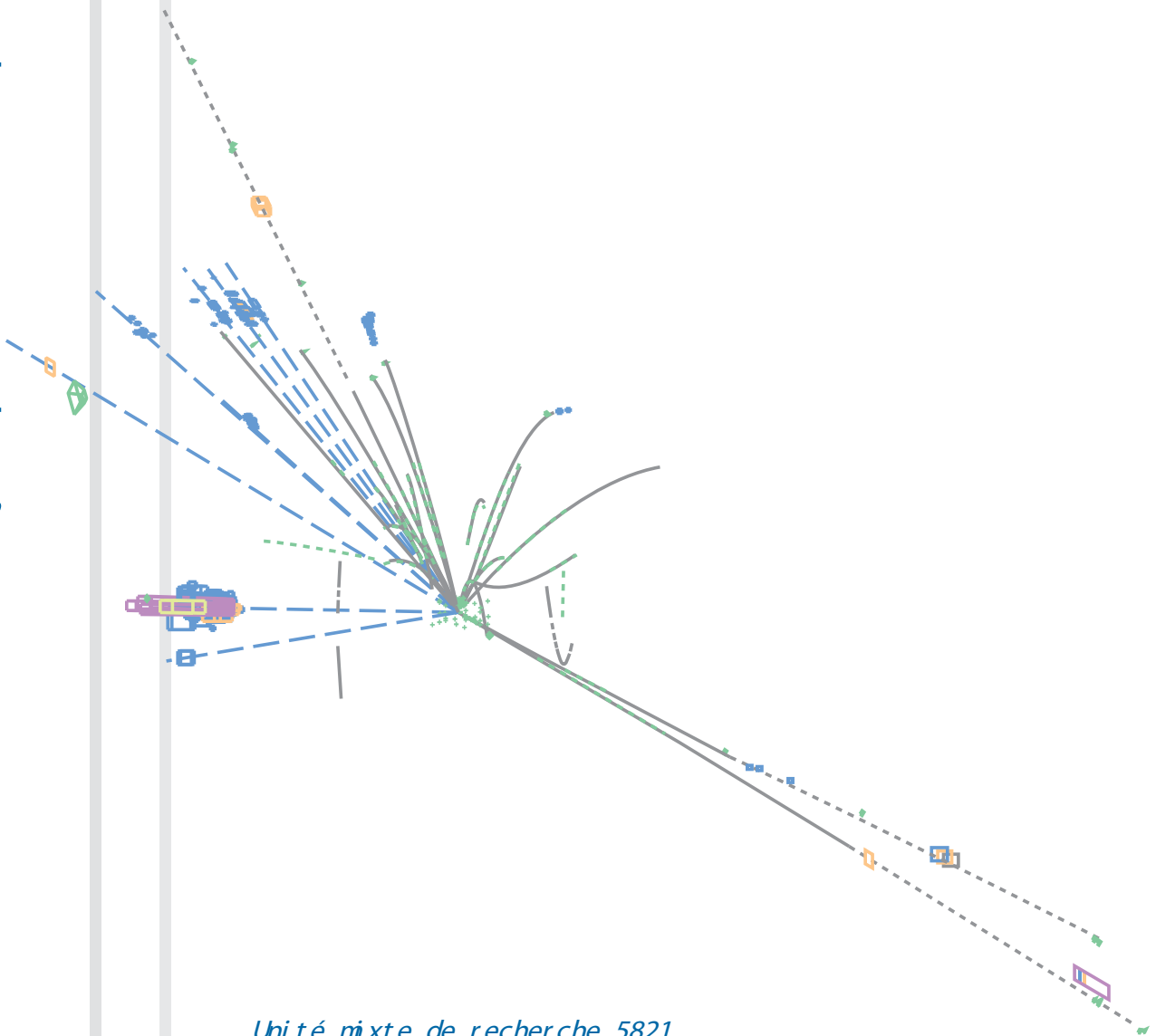




ETUDE PAR SIMULATION NUMERIQUE  
DU RETRAITEMENT DES DECHETS  
DU T.M.S.R (Thorium Molten Salt Reactor)

Xavier Doligez, Michel Allibert, Véronique Ghetta,  
Daniel Heuer et Elsa Merle-Lucotte



Unité mixte de recherche 5821

CNRS-INS2P3 / UJF / INPG

*ETUDE PAR SIMULATION  
NUMERIQUE DU RETRAITEMENT DES  
DECHETS DU T.M.S.R  
(Thorium Molten Salt Reactor)*

Xavier Doligez, Michel Allibert, Véronique Ghetta,  
Daniel Heuer et Elsa Merle-Lucotte

Rapport commun de Master 2 (Energétique physique) et troisième année d'école  
d'ingénieur (E.N.S.P.G. spécialité Génie Energétique et nucléaire)  
Février-Août 2007

## Abstract:

Molten salt reactors seem to be an alternative candidate to the classical fourth generation reactors such as the European Fast Reactor. Indeed molten salt reactors have changed since the Molten Salt Breeder Reactor (US molten salt reactor prototype, moderated with graphite). They could be reactors without graphite moderator which neutron spectrum reaches fast spectrum. Those kinds of reactors have a batch reprocessing plant which allows improvement in terms of radiotoxicity.

This report presents how we can simulate correctly molten salt reactor together with the salt reprocessing. Results are indicative results to prove that methods are self-sufficient to carry out a good study. The complete study would be done during the next three years of my thesis.

Keywords: Molten salt Reactors, Thorium, Radiotoxicity, Reprocessing, T.M.S.R.

## Résumé :

Les réacteurs à sels fondus semblent aujourd'hui présenter une alternative intéressante aux réacteurs de quatrième génération refroidis au sodium. En effet, les réacteurs à sels fondus ont beaucoup évolué depuis le M.S.B.R. (prototype américain de réacteur à sels fondus modéré au graphite et fonctionnant en spectre thermique). Le concept évolue aujourd'hui vers des réacteurs sans modérateur en cœur dont le spectre neutronique s'est considérablement durci par rapport au spectre thermique du M.S.B.R. Ces réacteurs possèdent une unité de retraitement couplée qui permet de purifier le sel et d'optimiser la gestion des déchets rejetés. On espère ainsi définir un retraitement efficace qui minimiserait la radiotoxicité de ce type de réacteur.

Ce rapport explique comment on simule l'évolution des réacteurs à sels fondus et on calcule la radiotoxicité des déchets produits. Les résultats donnés ici ne sont qu'indicatifs et servent surtout à montrer que les outils et méthodes développés pendant ce stage sont satisfaisants et permettront une étude beaucoup plus poussée lors de la thèse qui suit.

Mots clefs : Réacteurs à Sels Fondus, thorium, T.M.S.R., retraitement, radiotoxicité.

## **Table des matières**

Table des matières .....	1
Table des figures .....	2
Table des tableaux .....	2
Introduction .....	3
1 Le T.M.S.R. : définition et propriétés. ....	4
a. Du M.S.B.R. vers le T.M.S.R. ....	4
b. Les critères de choix du sel combustible.....	5
c. Le retraitement du cœur. ....	6
i. Le rôle du bullage.....	7
ii. La pyrochimie .....	8
iii. Le schéma de référence .....	8
d. La radiotoxicité : de la définition à la simulation.....	8
2 Outils de simulations.....	10
a. Le code d'évolution R.E.M. ....	10
b. La simulation de la partie chimique .....	11
i. La fluoration et les pièges .....	12
ii. Les réservoirs .....	12
iii. Les échangeurs contre-courant.....	12
3 Manipulation du combustible.....	15
Remarque sur la prolifération.....	18
4 Premiers résultats de radiotoxicité.....	19
a. Préliminaire sur le choix du combustible.....	19
b. Remarque sur les produits de fission.....	21
c. Le sel au bout de 200 ans .....	24
d. L'incinération .....	27
e. Comparaison avec un réacteur à neutrons rapide au sodium .....	28
Conclusion.....	31
Bibliographie.....	32
Annexe 1 : Diagramme ternaire LiF-NaF-ThF <sub>4</sub> .....	33
Annexe 2 : Schéma de référence de l'unité de retraitement pyrochimique. ....	34

## **Table des figures**

Figure 1 : Schéma de fonctionnement du M.S.B.R. (rose : sel, vert : modérateur, bleu clair : réflecteur, bleu foncé : matériau neutrophage, gris : matériau de structure).....	4
Figure 2: Schéma de principe du T.M.S.R. ....	5
Figure 3: Principe de fonctionnement de l'unité de retraitement.....	7
Figure 4: facteurs de dose des actinides .....	9
Figure 5: Schéma de fonctionnement d'un code d'évolution.....	11
Figure 6: schéma d'un piège du module S.U.R.....	12
Figure 7: schéma des transferts de matière dans un échangeur contre-courant. ....	13
Figure 8: schéma de l'unité de retraitement vu par le module S.U.R. ....	14
Figure 9: désintégration du thorium 232 .....	15
Figure 10: inventaire de sortie du sel de couverture en atomes par $\text{cm}^3$ .....	16
Figure 11: Evolution du thallium 208 lors du refroidissement de l'ensemble du sel couverture .....	17
Figure 12: Evolution de la quantité de thallium 208 dans l'uranium extrait du sel couverture en fonction du temps de refroidissement après extraction .....	17
Figure 13: Evolution de l'activité du thallium 208 pour un kilo d'uranium contenant 100 ppm d'uranium 232 à $t=0\text{s}$ .....	18
Figure 14: Diagramme N-Z des cycles thorium et uranium.....	20
Figure 15: Radiotoxicité à long terme d'un noyau d'uranium 238 et d'un noyau de thorium 232 .....	20
Figure 16: radiotoxicité des P.F .extrait pendant un an avec un retraitement très efficace (le cœur est retraité en totalité en 8 jours .....	23
Figure 17: radiotoxicité des P.F. extraits pendant 200 ans (le cœur est retraité en totalité en 2,3 ans) .....	23
Figure 18: composition du stockage final (en noir, les quantités extraites par le retraitement pyrochimique et en rouge les quantités extraites par le bullage) .....	24
Figure 19: radiotoxicité du stockage .....	25
Figure 20: radiotoxicité de l'inventaire à l'équilibre .....	26
Figure 21: totaux des radiotoxicité et comparaison avec le thorium consommé .....	26
Figure 22: radiotoxicité de l'inventaire après brûlage .....	27
Figure 23: radiotoxicité de la composition du tableau 2 .....	29
Figure 24: radiotoxicités totales des inventaires à l'équilibre d'un R.N.R.-Na et d'un T.M.S.R. comparées à celle de l'U-238 consommé.....	30

## **Table des tableaux**

Tableau 1: facteur de dose des différents éléments en question en Sv/Bq.....	21
Tableau 2: inventaire de décharge d'un R.N.R.-Na .....	28

## **Introduction**

Aujourd'hui, le problème du réchauffement climatique n'est plus à démontrer, et il est relativement acquis, du point de vue des spécialistes, que l'après pétrole passera par un développement massif du nucléaire. Quel nucléaire pour quel futur ? Les avis des différents experts ne sont pas tous en accord, mais par décision politique, un démonstrateur de réacteur de génération 4 sera en construction d'ici 2020.

Un réacteur de quatrième génération doit satisfaire des critères comme une sûreté accrue, un caractère peu proliférant, et une bonne gestion des déchets. Le travail effectué au sein du L.P.S.C. dans le Groupe de Physique des Réacteurs a montré que les Réacteurs à Sels Fondus (R.S.F.) pourraient satisfaire tous ces critères. Ces type de réacteurs ont déjà donné lieu à des démonstrateurs : l'A.R.E. (Aircraft Reactor Experiment) et le M.S.R.E. (Molten Salt Reactor Experiment). A la suite de ce succès, un réacteur de puissance a été prévu : le M.S.B.R. (Molten Salt Breeder Reactor) qui n'a certes jamais vu le jour, mais qui a donné à des études approfondies des R.S.F. Le M.S.R.E. a montré la faisabilité d'un réacteur type sel fondu en spectre thermique, mais présentait quelques grosses faiblesses pour un déploiement industriel.

Pour assurer la demande énergétique croissante, les différents experts estiment qu'il faudra doubler la production d'énergie primaire d'ici 2050. En effet, avec l'augmentation de la population et de la croissance, la production de 10 GTep (l'équivalent de 10 milliard de tonnes de pétrole) aujourd'hui devra passer au dessus de 20 GTep en moins de 50 ans [1]. Pour assurer une telle production sans augmenter de manière exorbitante le prix du kWh, il a semblé intéressant de repenser le concept de réacteur à sels fondus.

Ludovic Mathieu, pendant sa thèse [2], a effectué une série d'études paramétriques et a montré que le coefficient de contre-réaction de ce type de réacteur devenait très bon si l'on se plaçait en spectre rapide. Un nouveau type de réacteur vient de naître : le Thorium Molten Salt Reactor (ou T.M.S.R.) qui est un R.S.F. sans modérateur en cœur et qui par conséquent a un spectre plutôt rapide.

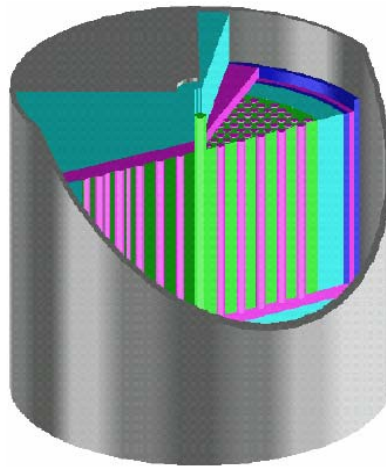
Aujourd'hui les études en cours sur le T.M.S.R. [3,4] ont continué à apporter des modifications comme par exemple la composition précise du sel combustible, ou le démarrage avec du combustible usé issu de Réacteur à Eau Pressurisé (R.E.P.). Cependant le problème du retraitement, autre point noir du M.S.B.R., n'est pas encore parfaitement clair. En effet, pour que le M.S.B.R. fonctionne de manière correcte, il aurait fallu retraiter une quantité colossale de sel combustible en un laps de temps très court avec des procédés parfois douteux. Aujourd'hui, on sait que des solutions chimiques existent et les études de simulation neutronique montrent que le retraitement n'est plus un point clef du bon fonctionnement du réacteur mais il est nécessaire de voir d'un point de vue radiotoxicité ce qui est acceptable et ce qui ne l'est pas. Dans ce cadre, mon stage de Master recherche (commun avec mon projet de fin d'étude) a pour but de simuler une unité de retraitement typique et de réaliser un couplage neutronique/chimique du problème. Le réacteur de référence est un T.M.S.R. composé d'un sel  $\text{LiF-NaF-ThF}_4$  dans des proportions que l'on examinera ultérieurement.

Une partie des résultats des études récentes, le schéma de retraitement des déchets ainsi que quelques propriétés du T.M.S.R., sont regroupés dans une première partie de ce rapport. Dans une deuxième partie, on se focalisera sur les aspects de simulation, notamment de chaleur résiduelle ou de radiotoxicité : on verra comment fonctionne un code de calcul d'évolution d'un R.S.F. et comment l'on peut s'en servir pour faire une simulation d'un couplage neutronique/chimique. Enfin, dans une troisième partie on regardera de plus près les résultats que l'on peut obtenir avec une telle simulation.

# **1 Le T.M.S.R. : définition et propriétés.**

## ***a. Du M.S.B.R. vers le T.M.S.R.***

Le concept de réacteur à sels fondus remonte au début des années 50 avec l'ARE (Aircraft Reactor Experiment), il a été développé dans le but de l'embarquer dans un avion. Un prototype de ce réacteur a fonctionné pendant une centaine d'heures à une puissance de 2,5MWth mais il a montré de gros problèmes de corrosion des matériaux de structure par le sel combustible. Suite à cette première expérience, l'ORNL a décidé de faire évoluer le concept de R.S.F. vers le M.S.R.E. (Molten Salt Reactor Experiment) en 1964 puis enfin vers le M.S.B.R. (Molten Salt Breeder Reactor). Le sel combustible devait s'écouler dans des canaux de graphite qui jouaient le rôle de modérateur. On peut schématiser le M.S.B.R. par la figure 1 :



**Figure 1 : Schéma de fonctionnement du M.S.B.R. (rose : sel, vert : modérateur, bleu clair : réflecteur, bleu foncé : matériau neutrophage, gris : matériau de structure)**

Lors de sa thèse, Ludovic Mathieu [2] a effectué une étude paramétrique du M.S.B.R. en fonction du rayon des canaux. Les principaux résultats de cette étude montrent que les réacteurs à sels fondus présentent d'excellentes propriétés en spectre épithermique ou en spectre rapide : c'est le T.M.S.R. non modéré (Thorium Molten Salt Reactor). Le concept des canaux de sels n'a plus de sens et la cuve du réacteur se rapproche alors d'une marmite dans laquelle on fait circuler le sel combustible (cf. figure 2).

Le cœur est composé de 20 m<sup>3</sup> de sel dont la composition est discutée dans la partie suivante. La température de fonctionnement avoisine les 630 °C en moyenne. La hauteur du cœur est de 2,6m et son rayon interne de 1,25m pour une puissance totale de 2,5GWth ou 1GWe.

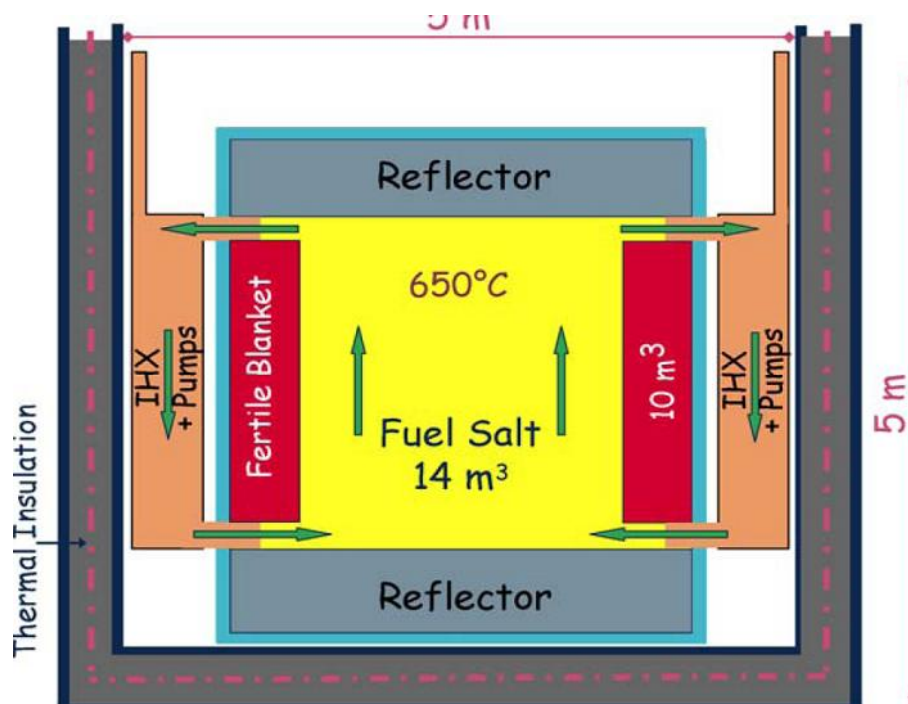


Figure 2: Schéma de principe du T.M.S.R.

### ***b. Les critères de choix du sel combustible***

Historiquement, le M.S.B.R. devait être un surgénérateur avec des neutrons thermiques et les sections efficaces d'absorption limitaient le choix du sel [5]. Mais, les possibilités ne sont pas très nombreuses, et donc, une étude exhaustive est possible. On peut utiliser des fluorures ou des chlorures : en effet, les iodures ou les bromures sont trop instables et difficiles à manipuler et on les élimine immédiatement. Le chlore naturel existe sous forme de chlore 35 (75.77%) et de chlore 37 (24.23%). Lors de l'irradiation il y a production de chlore 36 par capture neutronique sur le chlore 35 ou par (n,2n) sur le chlore 37. Le chlore 36 a une période de  $3,1.10^5$  ans et semble être l'élément qui pose le plus de problème lors du démantèlement des vieilles centrales au graphite (alors que le chlore n'était que sous forme de traces dans les structures). Par conséquent, on élimine l'utilisation des chlorures et il ne reste donc que l'emploi du fluor comme anion. Pour le cation, le choix est plus large, on peut en effet envisager du fluorure de lithium, du fluorure de calcium, du fluorure de sodium ou même du fluorure de magnésium. Le lithium, même s'il a été historiquement choisi dans le M.S.B.R., possède un isotope qui capture très fortement les neutrons : le lithium 6 présent à 7,5% dans le lithium naturel (section efficace de capture en spectre rapide de 60 barns). Il faut donc enrichir le lithium en lithium 7 pour ne pas contaminer le sel combustible en matière neutrophage. Le lithium enrichi reste une denrée très chère : 5 euros le gramme mais ce prix reste raisonnable en comparaison du prix d'un réacteur (dans  $20\text{ m}^3$  de sel il y a environ 10 tonnes de lithium, ce qui revient à environ 50 millions d'euros en comparaison à environ 3 milliards d'euro pour un E.P.R. aujourd'hui). Il faut noter que le M.S.B.R. fonctionnait en spectre thermique et donc, plus les constituants du sel étaient des noyaux légers, et plus le sel était modérateur. Aujourd'hui avec le T.M.S.R., on n'a plus ce problème de thermaliser les neutrons, on peut donc accepter des noyaux lourds comme constituants du sel.



Le sodium possède une résonance d'absorption en spectre rapide qui pose beaucoup de problème de sûreté notamment dans les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Cependant, des études ont montré que la sûreté du T.M.S.R. n'est pas sensible à cette résonance de capture. En effet, une vidange du caloporteur dans le T.M.S.R. fait perdre du sel et donc des absorptions, mais fait aussi perdre du combustible dans les mêmes proportions ce qui a pour conséquence de rendre le cœur plus transparent aux neutrons. Finalement le coefficient de vidange s'avère négatif même en présence de sodium.

En plus des caractéristiques neutroniques, les caractéristiques physico-chimiques des composés sont également très importantes. Le point de fusion des sels reste un grand point clef. Le sel de base retenu dans le M.S.B.R. est du fluorure de lithium et historiquement, on garde une forte proportion de LiF, mais on est tenté d'ajouter de nombreux composants pour améliorer les propriétés du sel. On peut par exemple ajouter du BeF<sub>2</sub> ou du CaF<sub>2</sub> pour abaisser le point de fusion du sel. La proportion molaire de noyaux lourds n'est pas non plus évidente. Une étude faite sur le déploiement des réacteurs de ce type montre que 17,5% de noyaux lourds dans le sel semble présenter un optimum [4]. On restera donc sur cette proportion. Dernièrement, on a proposé l'introduction de fluorure de sodium (NaF) qui pourrait présenter plusieurs avantages mais le diagramme ternaire LiF-NaF-ThF<sub>4</sub> montre qu'il faut introduire beaucoup de fluorure de sodium pour avoir un abaissement significatif du point de fusion du sel (figure en annexe 1 pour cause de lisibilité). On retiendra donc une composition typique : LiF (44,5%)-NaF(38%)-(NL)F<sub>4</sub>(17,5%) (NL : Noyaux Lourds). Cette composition sera celle du sel des simulations que nous avons faites, mais rien n'est encore figé, et aucune composition ne semble présenter de réels avantages ou de réels inconvénient. On a même envisagé d'enlever totalement le lithium et de ne garder que du fluorure de sodium.

Pour le sel de couverture, la composition sera du fluorure de lithium et du fluorure de thorium à une composition eutectique LiF (72%)-(NL)F<sub>4</sub> (28%). L'ajout de sodium n'est pas nécessaire pour baisser le point de fusion.

Finalement, la problématique du choix du sel se pose aujourd'hui plus d'un point de vue chimique que neutronique, le concept de T.M.S.R. étant à la fois souple et robuste.

### ***c. Le retraitement du cœur.***

Lors du fonctionnement du réacteur, il y a formation de produits de fission (dont les lanthanides) et d'actinides mineurs. La production de tous ces éléments peut non seulement perturber le bon fonctionnement du réacteur par l'absorption neutronique des produits de fission ou des actinides mais aussi modifier la chimie du sel et provoquer par exemple la précipitation de certaines espèces sous formes plus ou moins complexes. Même si la partie neutronique du problème semble être mineure, on verra ultérieurement qu'un retraitement efficace permettrait d'envisager un conditionnement sélectif des différents déchets. On pourrait ainsi séparer les éléments à vie courte des éléments à vie longue.

Le retraitement du cœur est aujourd'hui envisagé grâce à deux procédés bien distincts. D'un côté, les produits de fissions non solubles dans le sel, tels que les gaz rares ou les métaux nobles, sont extraits avec un bullage d'hélium (prévu au niveau des pompes dans le M.S.B.R.) et d'autre part, on réalise un traitement pyrochimique hors cœur sur de petits volumes (batch) de sel combustible extraits du cœur. On schématise le processus de retraitement dans la figure 3 :

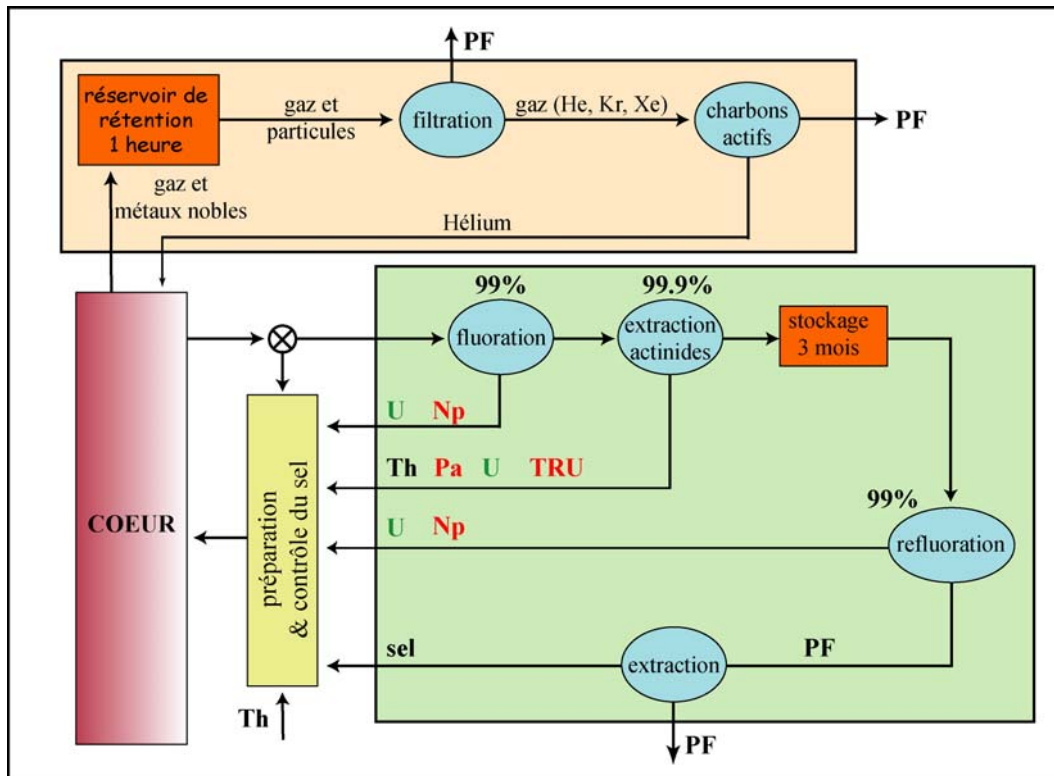


Figure 3: Principe de fonctionnement de l'unité de retraitement

### i. Le rôle du bullage

On attachera une grande importance au bullage : en effet comme la plupart des produits de fissions ne sont pas stables à l'échelle de temps considérée, les fils issus des décroissances des produits de fissions non solubles pourront être en partie extraits du cœur grâce au bullage. On citera à titre d'exemple le cas du césium qui pose de gros problème de radioprotection et qui est, de plus, très soluble dans le sel. Le césium possède deux isotopes produits en quantité non négligeable et qui ont une durée de vie significative : le césium 135 qui a une durée de vie de 2,3 millions d'années et le césium 137 qui a une durée de vie d'environ 30 ans. Ces deux isotopes sont issus de la décroissance du xénon. Si l'on arrive à extraire le xénon suffisamment rapidement (soit plus rapidement que sa période de décroissance), la localisation de la décroissance du xénon ne sera plus dans le sel mais bien à l'extérieur du sel dans le circuit de retraitement de l'hélium du bullage. On aura donc, indirectement, extrait le césium du sel. Comme le montre la figure 1.3, le circuit de retraitement de l'hélium comporte d'abord un réservoir de rétention d'une heure qui permettra de laisser refroidir les produits de fissions. Ensuite, on a une espèce de soupe constituée de gaz (hélium, krypton et xénon) et de particules (agrégats de métaux nobles) qu'il faut traiter. On pense donc à une filtration pour séparer les particules solides puis un passage sur charbon actif pour séparer les différentes espèces gazeuses. Il faut bien être conscient que le principe de retraitement doit être extrêmement simple pour éviter la production de déchets secondaires par activation des filtres ou charbon actifs. A titre d'exemple, un filtre du circuit de retraitement du M.S.B.R. aurait dû changer quasiment tous les jours.

## **ii. La pyrochimie**

Les éléments solubles dans le sel sont quant à eux traités par un processus pyrochimique qu'il faut encore définir. On commence par fluorer le sel pour en extraire l'uranium et le neptunium. Le sel subit alors deux extractions réductrices différentes qui permettront dans un premier temps d'extraire les actinides (dont les transuraniens) puis les produits de fission. On pense effectuer cette extraction à l'aide de bismuth enrichi en thorium. Les procédés ne sont pas encore totalement définis mais il est important de noter qu'il n'y a pas de verrou technologique au retraitement de ce sel. En effet, l'extraction se fait par des procédés d'oxydoréduction connus.

Enfin, on note aussi la possibilité de jouer sur la solubilité des différents constituants dans le sel, solubilité qui est fonction de la température. On peut imaginer jouer sur la température pour faire précipiter certains éléments, que l'on pourra ensuite récupérer par décantation par exemple. Grâce à ce procédé, on peut espérer séparer sélectivement les différents éléments par cristallisation. On verra ensuite comment utiliser la recristallisation pour extraire par exemple le baryum, composé extrêmement stable en fluorure.

## **iii. Le schéma de référence**

Pour définir de manière précise un procédé de retraitement, et pour mettre fin à de nombreuses attaques sur la faisabilité du retraitement, une réunion avec des chimistes et des neutroniciens a été conduite en juin dernier à Paris par Sylvie Delpech. Il s'en est suivi une proposition de schéma de retraitement pyrochimique complet, à savoir : fluoration, extraction réductrice par le thorium de tous les éléments, puis désextraction en milieu chlorure des lanthanides et enfin extraction des actinides de la phase métal dans le sel fondu propre. On présente ce schéma en annexe 2 (pour cause de lisibilité). Il reste cependant quelques problèmes :

- ✓ Le zirconium ne peut pas être extrait de la nappe métallique en même temps que les lanthanides car il a un potentiel trop élevé.
- ✓ Le thorium existe en milieu chlorure. L'extraction des lanthanides risque de s'accompagner d'une oxydation de thorium.

Des solutions sont envisagées pour remédier à ces problèmes. Comme on l'a dit, l'unité de retraitement permet de séparer les produits de fission des actinides. Ces séparations ont plusieurs effets : l'optimisation du réacteur (on évite l'empoisonnement du sel), l'incinération des actinides mineurs (on évite leur accumulation) et enfin une possible séparation isotopique.

## ***d. La radiotoxicité : de la définition à la simulation***

Le risque radiologique peut se manifester de trois façons :

- ✓ L'irradiation externe due à l'émission de rayonnements X ou gamma, à partir de source à l'extérieur de l'organisme humain.
- ✓ La contamination externe due à la fixation de produits radioactifs à la surface de la peau.
- ✓ La contamination interne, due à l'incorporation de produits radioactifs dans l'organisme humain.

C'est en fait un danger potentiel que représente une masse de produits radioactifs si une personne était soumise aux rayonnements ionisants. S'agissant de la gestion des déchets à long terme, on ne regarde que le risque dû à la contamination interne dont la voie d'incorporation serait l'ingestion. En fait, il est reconnu parmi les experts que la seule vraie possibilité de gérer de grosses quantités de matière radioactive est l'enfouissement en couche

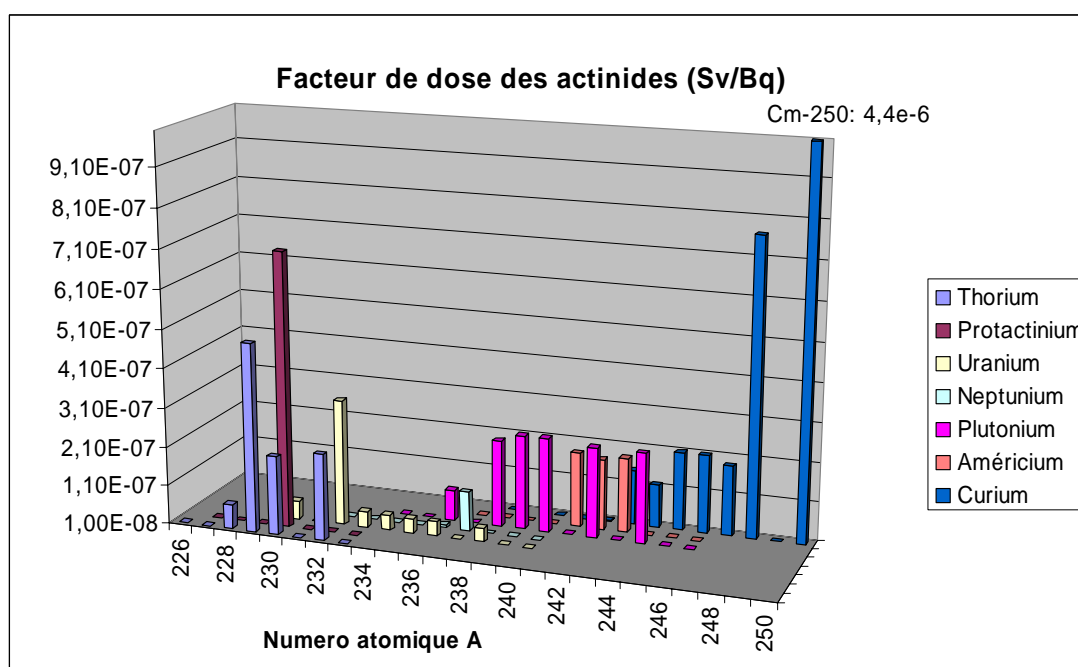
géologique profonde. Le principal risque est alors la contamination d'une nappe phréatique par l'un des sites de stockage et la pollution d'eau potable.

Le ministère de la santé, de la famille et des personnes handicapées dans l'arrêté du premier septembre 2003 définit les modalités de calcul des doses efficaces et des doses équivalentes résultant de l'exposition aux rayonnements ionisants [6]. On y trouve, entre autre, les facteurs de pondération ( $F_d$ ) de chaque radio-isotope en sievert par becquerel qui permet de trouver, à partir d'une activité donnée, la radiotoxicité. Ces facteurs dits facteurs de dose font la distinction entre une irradiation alpha, bêta ou gamma, la forme chimique, et l'affinité avec le métabolisme. Il représente le volume d'eau dans lequel il faudrait diluer le produit pour que cette même eau soit potable aux regards des normes d'expositions du publique.

On note R la radiotoxicité et on la définit comme :

$$R(Sv) = F_d (Sv/Bq).A(Bq) \quad (1)$$

Comme les facteurs de doses sont connus, le travail pour déterminer R se résume à la détermination de l'activité A qui est proportionnelle à l'inventaire. On trace les facteurs de dose des actinides mineurs dans la figure 4 :



**Figure 4: facteurs de dose des actinides (le curium 250 à une radiotoxicité de  $4,4 \cdot 10^{-6}$  Sv/Bq)**

Pour déterminer la radiotoxicité à long terme, il faut donc connaître à chaque instant la composition de l'échantillon initial. Les équations d'évolutions des noyaux sont de simples équations différentielles du premier ordre. On écrit l'équation d'évolution d'un noyau i (où  $\lambda$  représente la constante de désintégration du noyau i et  $\lambda_{i \rightarrow j}$  la constante de désintégration du noyau j vers le noyau i):

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda N_i + \sum_{i \neq j} \lambda_{j \rightarrow i} N_j \quad (2)$$

Chaque composition à l'instant t dépend de toutes les autres de l'échantillon. Si celui-ci comporte N éléments différents, on a donc N équations différentielles du premier ordre couplées à résoudre. On peut trouver de manière analytique les quantités en fonction de l'instant t, mais les coefficients sont déterminés numériquement par un formalisme matriciel

grâce à la bibliothèque de calcul algébrique LAPACK (Linear Algebra PACKage) que l'on peut télécharger sur internet [7].

Cette résolution m'a conduit à réaliser un programme qui, à partir d'une composition initiale, donne la chaleur résiduelle, l'activité, l'inventaire et la radiotoxicité. A partir de ce programme, on verra dans la troisième partie que l'on peut déterminer la radiotoxicité à long terme des déchets produits par un R.S.F. On pourra aussi voir la chaleur dégagée par les désintégrations et les possibilités que nous laisse un tel outil.

## 2 Outils de simulations

### a. *Le code d'évolution R.E.M.*

Les codes de calculs neutroniques traditionnels (déterministes ou probabilistes) consistent en des calculs effectués à des instants précis et ne permettent pas de déterminer les évolutions de compositions. L'évolution de la composition du cœur est déterminée par les équations suivantes (équations de Bateman) qui diffèrent un peu des équations d'évolutions du paragraphe précédent à cause du flux neutronique :

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j \neq i} \langle Y_{j \rightarrow i} \sigma_{j \rightarrow i}^{abs} \phi \rangle_E + \sum_{j \neq i} Y'_{j \rightarrow i} \lambda_{j \rightarrow i} N_j - \langle \sigma_i^{abs} \phi \rangle_E N_i - \lambda_i N_i + K_i \quad (3)$$

Cette équation est juste un bilan de matière entre un instant  $t$  et un instant  $t+dt$  où l'on fait la somme des sources du noyau  $i$  et la somme des disparitions du noyau  $i$ . La disparition est une somme de deux termes : la désintégration radioactive et la capture neutronique alors que les termes de création sont composés de la somme de toutes les désintégrations vers le noyau  $i$  et des captures neutroniques vers ce même noyau. On note  $\sigma$  les sections efficaces de capture,  $Y$  les rapports d'embranchement, et  $\lambda$  les constantes de désintégration radioactives.

Comme on l'a dit précédemment, les codes de calculs classiques ne permettent pas la résolution de ces équations, donc le groupe de physique des réacteurs du L.P.S.C. a développé une méthode d'intégration numérique de ces équations par une méthode de Runge et Kutta [8]. Un premier calcul M.C.N.P. effectué à un instant  $t_0$  précis fournit une valeur de flux neutronique. Avec cette valeur de flux et les compositions à l'instant  $t_0$ , le code d'évolution (R.E.M.) calcule l'évolution des compositions jusqu'à un temps  $t_1$  et effectue un deuxième calcul M.C.N.P. pour déterminer une valeur de flux plus précise. Avec cette valeur de flux, une deuxième évolution est réalisée entre le temps  $t_0$  et  $t_1$  pour déterminer une nouvelle composition. Avec un test du  $\chi^2$  le programme détermine si l'écart entre les deux évolutions est acceptable ou non (on fixe l'erreur limite acceptable). Si l'écart entre les deux compositions déterminées par les deux évolutions est acceptable, le code passe à l'itération suivante en augmentant l'intervalle de temps. Si, par contre, cet écart n'est pas acceptable, on recommence alors un calcul M.C.N.P., une évolution et un autre test du  $\chi^2$ . Si cette fois-ci, l'écart est acceptable, le programme passe à l'itération suivante sans augmenter l'écart de temps, mais si au contraire, l'écart n'est toujours pas satisfaisant, on effectue alors l'intégration jusqu'à un autre temps :  $t_1'$  plus proche de  $t_0$ . On appellera cette intervalle de temps le pas d'ajustement. Le code effectue le même travail que précédemment pour augmenter le pas d'ajustement.

Durant tout le temps de l'évaluation et du calcul, il faut garder à l'esprit que certaines grandeurs doivent rester constantes. Le programme ajuste les compositions avec un terme de source pour garder, par exemple, le  $k_{eff}$  constant ou la somme des noyaux lourds constante. Le schéma de principe de fonctionnement du code d'évolution est représenté dans la figure 5.

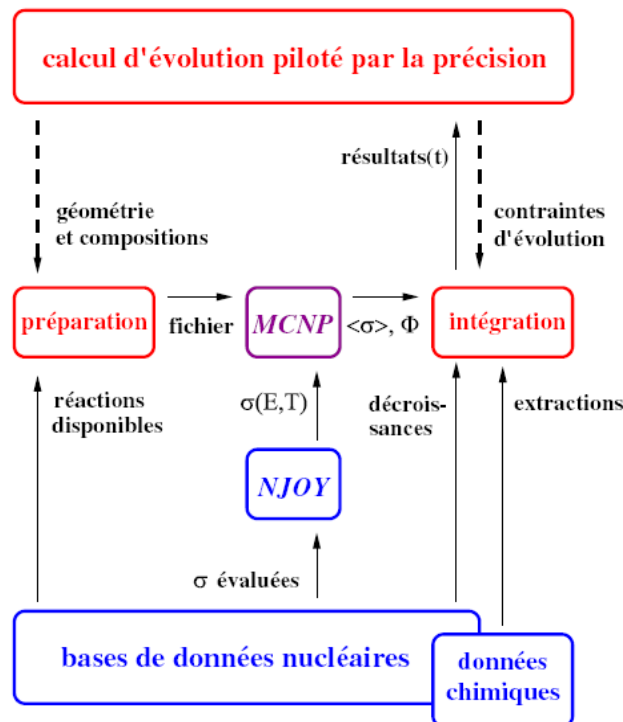


Figure 5: Schéma de fonctionnement d'un code d'évolution

## b. La simulation de la partie chimique

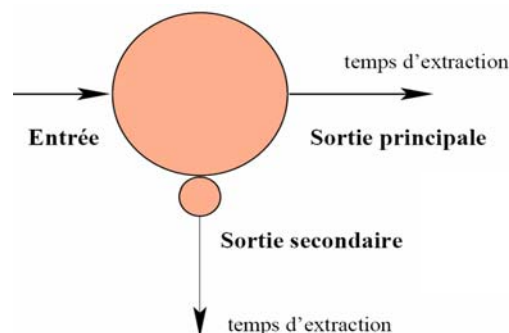
Dans le paragraphe précédent, on a vu comment on pouvait simuler un cœur complet en fonction du temps. On peut donc suivre les inventaires à des instants précis et non plus seulement au démarrage ou à l'équilibre. Mais dans un R.S.F., le cœur est liquide et toute la matière fissile n'est pas constamment dans le cœur. De plus, l'unité de retraitement reste entièrement à modéliser, et pour observer les dangers radiotoxiques et chimiques, il serait pratique de pouvoir connaître les inventaires en certains points clefs du retraitement. Un module a pour cela été intégré dans le code d'évolution : le module S.U.R. (Simulation de l'Unité de Retraitement). Son objectif est de pouvoir simuler de façon précise toute l'unité de retraitement en prenant en compte, non seulement les échanges chimiques mais aussi les décroissances radioactives. Le sel circulant dans le cœur du réacteur plus son unité de retraitement, on découpe l'ensemble en plusieurs zones. Le passage d'une zone à l'autre (cœur vers retraitement) se traduit par une probabilité de passage. On l'assimile alors à une décroissance d'une zone vers une autre, définie par une constante de temps ce qui revient à supposer des réacteurs chimiques parfaitement agités. Chaque noyau en cœur a donc plusieurs possibilités de décroissance ou de ce que l'on appellera pseudo-décroissance, et il faut définir une proportion relative de chacune de ces possibilités.

Le module S.U.R. du code d'évolution regroupe toutes les zones préalablement définies et gère les pseudo-décroissances d'une zone à l'autre. Les possibilités sont multiples grâce au mode de fonctionnement du code. En effet, il y a à disposition un ensemble d'éléments basiques que l'on assemble pour faire une unité de retraitement. On a alors à notre disposition des pièges, des pompes, des modules d'extraction, des modules de réinjection, des éléments de stockage, ou même des échangeurs contre-courants. Avec ces briques élémentaires, on pourra reconstituer et simuler tout le processus de retraitement. Les fluorations par exemple seront simulées par des pièges où l'on n'extraira que quelques

noyaux particuliers comme par exemple l'uranium, le neptunium et quelques produits de fission. Les échanges et extractions par oxydoréduction seront simulés par des échangeurs contre-courants. Il y a certaines règles de construction comme par exemple la présence d'une et une seule pompe par circuit, mais le système reste très souple et l'on peut simuler quasiment n'importe quelle configuration d'unité.

### i. La fluoration et les pièges

La fluoration est un processus chimique, et comme tout processus chimique, il n'est pas parfait et est caractérisé par une certaine efficacité. Le but de cette fluoration est de séparer l'uranium du reste du sel combustible. L'efficacité de la fluoration est classiquement prise à 99.9%. Dans le programme, on ne peut gérer que des temps de passage d'un module à un autre. Pour gérer l'efficacité, l'astuce consiste alors à donner des temps différents de passage d'une zone à une autre. On présente un schéma de fluoration dans la figure 6.



**Figure 6: schéma d'un piège du module S.U.R.**

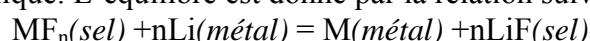
Il y a donc deux temps d'extraction à caractériser : le passage de l'entrée vers la sortie principale et le passage de l'entrée vers la sortie secondaire. Dans le cas de la fluoration, on veut sortir l'uranium vers la sortie secondaire avec une efficacité de 99,9%. Comme la proportion de passage entre la sortie principale et la sortie secondaire est dans le rapport des temps d'extraction (pseudo-décroissance), on aura donc un temps d'extraction vers la sortie principale qui sera un pour mille du temps d'extraction vers la sortie secondaire et on gère donc de cette manière les extractions sélectives et autres pièges.

### ii. Les réservoirs

L'introduction de réservoirs dans le code de calcul est primordial. En effet, en plusieurs endroits du processus de retraitement, on attend que certains éléments décroissent pour éviter de les retrouver au stockage final. Pour cela, on a introduit des réservoirs que l'on définit par un temps d'injection. Ce temps définit la pseudo-décroissance de l'élément amont vers ce réservoir.

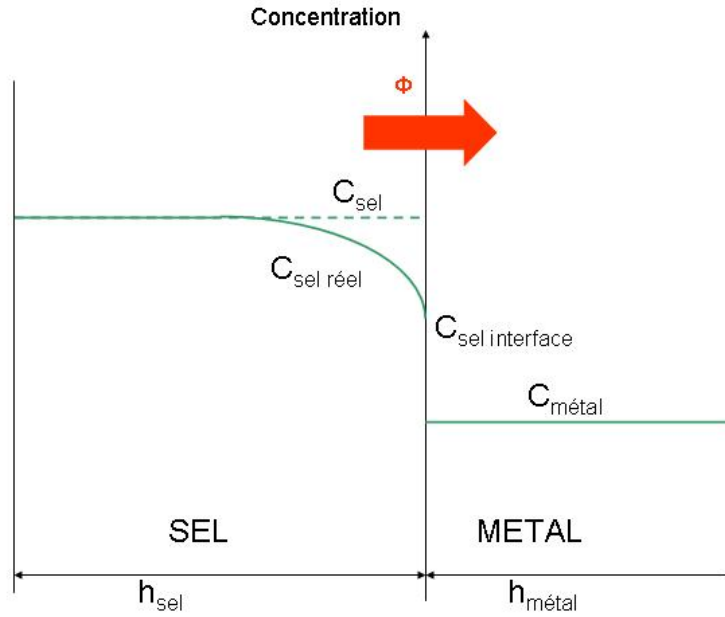
### iii. Les échangeurs contre-courant

On pourrait décider de simuler notre unité seulement avec des pièges et des réservoirs avec des temps pertinents, mais dans un souci de précision, le code contient aussi des éléments plus évolués comme les échangeurs contre-courant par exemple. Le principe est assez simple et consiste en un équilibre chimique entre un élément dans une phase saline et un autre dans une phase métallique. L'équilibre est donné par la relation suivante :



Les constantes d'équilibre de ce type de réactions sont bien connues et répertoriées. Cependant, ces constantes définissent un équilibre thermodynamique et on s'intéresse à la cinétique. Il est envisageable que le temps de séjour dans l'échangeur soit trop court pour que l'équilibre thermodynamique n'ait le temps de s'établir. Dans ce type d'échangeurs, les processus limitant peuvent être la cinétique de réaction à l'interface ou la diffusion des constituants dans les sels. Comme habituellement la cinétique de l'interface est très rapide, et comme le transfert se fait du sel vers le métal, on considère la diffusion sel→métal comme étape limitante.

On représente un schéma du processus chimique en figure 9 [9].



**Figure 7: schéma des transferts de matière dans un échangeur contre-courant.**

L'équation du flux de matière est donnée par la relation suivante :

$$\phi = k(C_{sel} - C_{sel\_interface}) \quad (4)$$

k étant un coefficient de transfert mal connu, C les concentrations et  $\Phi$  le flux de matière. Si on note D le coefficient de partage à l'équilibre (le rapport des concentrations à l'équilibre), on a alors une relation entre la concentration du sel à l'interface et du métal (on suppose qu'il y a un équilibre thermodynamique local à l'interface). On a donc par définition :

$$D = \frac{C_{m\acute{e}tal}}{C_{sel\_interface}} \quad (5)$$

Pour définir les pseudo-décroissances de manière correcte, relier la relation du flux au nombre d'atomes présents dans le sel. Le nombre d'atomes qui passe l'interface définie par une surface d'échange S par unité de temps est donné par la relation suivante :

$$\frac{dN}{dt} = -\phi.S \quad (6)$$

En reliant les trois équations ci-dessus en intégrant la définition de la concentration qui est un nombre d'atomes sur un volume, on en déduit alors l'équation suivante :



$$\frac{dN_{sel}}{dt} = k.S.\frac{N_{m\acute{e}tal}}{V_{m\acute{e}tal}.D} - k.S.\frac{N_{sel}}{V_{sel}} \quad (7)$$

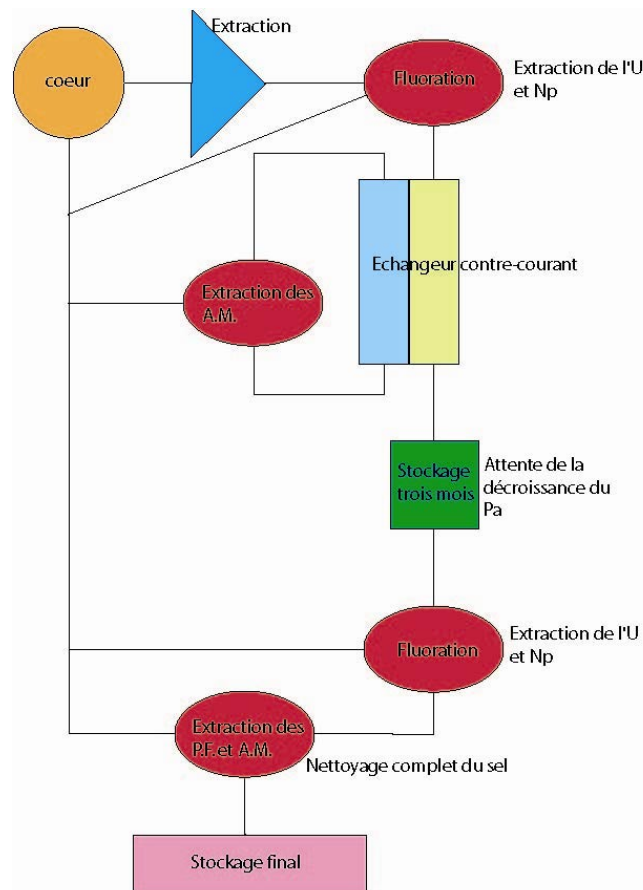
Cette équation est en fait une somme d'un terme de flux du métal vers le sel et d'un flux du sel vers le métal. On a alors défini les pseudo-décroissances voulues : cette équation est une équation différentielle du premier ordre à coefficient constant, exactement comme une équation de désintégration nucléaire. Les définitions des pseudo-décroissances sont donc données par les définitions qui suivent :

$$\lambda_{sel \rightarrow m\acute{e}tal} = k.S.\frac{C_{m\acute{e}tal}}{D} \quad (8)$$

$$\lambda_{m\acute{e}tal \rightarrow sel} = k.S.C_{sel} \quad (9)$$

Toute la difficulté est alors de définir k, coefficient de transfert qui paraît difficile à identifier. Il semblerait pourtant que sa valeur varie autour de  $10^{-4}$  [9], valeur que l'on prendra par défaut.

Finalement, on a à notre disposition dans le module S.U.R. du code d'évolution une série de briques élémentaires qui permettent de simuler l'unité de retraitement pyrochimique défini par la figure de l'annexe 2. Un schéma de cette modélisation est représenté dans la figure 8.



**Figure 8: schéma de l'unité de retraitement vu par le module S.U.R.**

Il faut noter que cette modélisation est une modélisation possible parmi beaucoup d'autres. C'est avec ce schéma que l'on a fait nos premières simulations et tous les résultats

présentés dans ce qui suit sont issus de cette modélisation. Aucune optimisation n'a été faite et on sait déjà que beaucoup de modifications vont devoir être apportées.

### 3 Manipulation du combustible

Comme on l'a vu dans une première partie, le T.M.S.R. fonctionne en cycle Th/<sup>233</sup>U. Il y a plusieurs avantages à l'utilisation de ce combustible : d'abord, il faut multiplier le nombre de captures neutroniques successives sur les noyaux lourds pour former des actinides mineurs, ensuite, un des descendants du thorium 232 se désintègre en produisant un photon de 2,6 MeV comme on peut le voir sur la figure 9. Les isotopes responsables de cette émission sont aussi des fils de l'uranium 232 produit en quantité non négligeable dans un T.M.S.R. et possédant une période bien plus courte que le thorium 232 ( $T_{1/2}({}^{232}\text{U})=72 \text{ ans}$ ) [10].

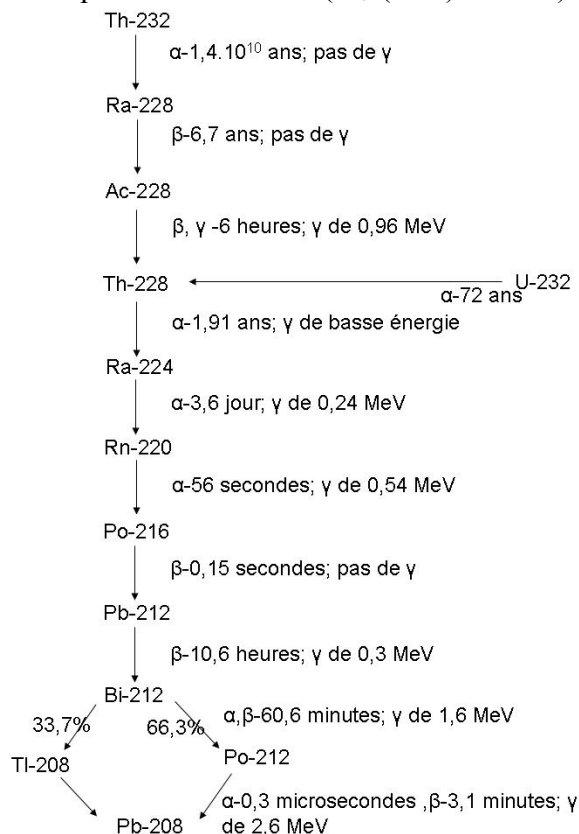
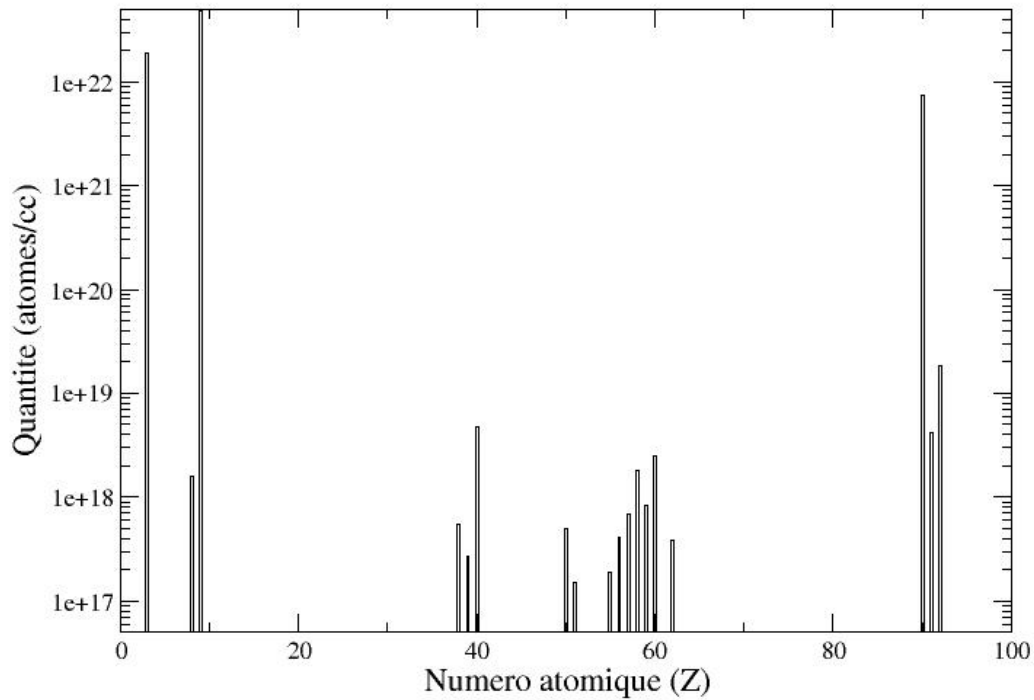


Figure 9: désintégration du thorium 232

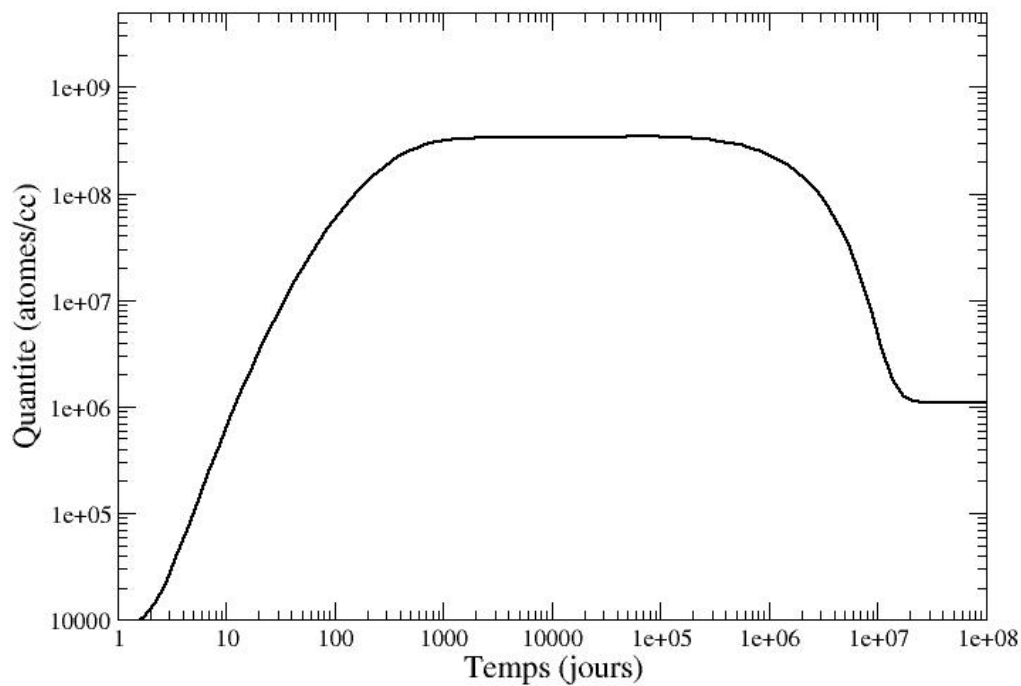
Cette caractéristique est intéressante pour le caractère non proliférant de la filière car une émission de rayonnement gamma d'une telle énergie nécessite un blindage particulier. L'avantage devient un inconvénient pour la fabrication de nouveau sel combustible. Le thorium 232 a une demi-vie de  $1,4.10^{10}$  ans, très supérieure à la demie vie de tous ses descendants. Par conséquent les fils, émetteurs de gamma de forte énergie, sont en faible quantité. Cependant, au déchargement des couvertures du T.M.S.R. et lors de la fabrication de nouveau combustible, il y a une quantité non négligeable d'uranium 232 qui a une période de 72 ans et de thorium 228 qui a une période de 1,91 ans. Lors du refroidissement de la couverture, il y a donc décroissance du thorium 228 puis de l'uranium 232 et donc création de thallium 208 précurseur du gamma de forte énergie. On peut calculer, à partir d'un inventaire de décharge, la quantité de thallium 208 au cours du refroidissement de la couverture fertile. L'inventaire de sortie, donné par le code de calcul R.E.M., est représenté sur la figure 10. On voit qu'il y a très peu de produits de fission et essentiellement de l'uranium et du thorium.

Nous rappelons que le sel de couverture est composé de fluorure de lithium et de fluorure de thorium à l'instant initial. Il est donc normal de ne pas y trouver de sodium.

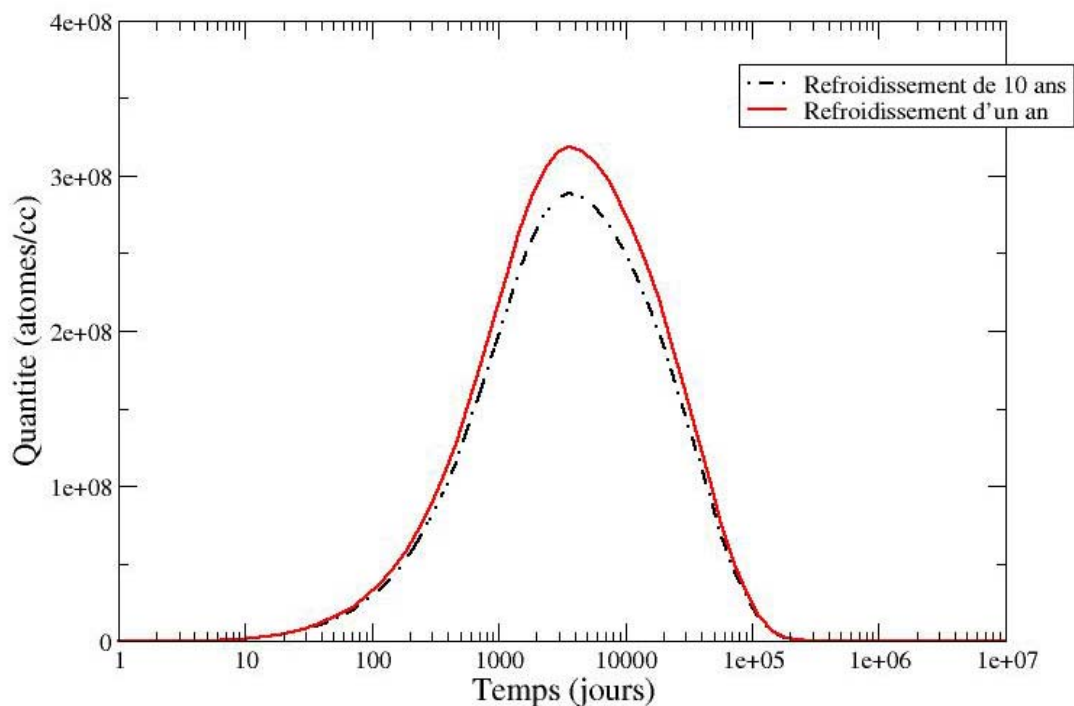


**Figure 10: inventaire de sortie du sel de couverture en atomes par  $\text{cm}^3$**

On calcule à partir de ce fichier les décroissances pour trouver la quantité de thallium au cours du refroidissement, que l'on représente dans la figure 11. On voit que si l'on attend trop longtemps, l'inventaire en thallium 208 sera trop fort et l'on ne pourra plus travailler sur le sel réflecteur. On présente l'évolution du thallium 208 après fabrication du nouveau combustible pour différents temps de refroidissement dans la figure 12. Là encore, sur cette courbe, on peut constater qu'un refroidissement de dix ans ne change pas vraiment de manière significative l'inventaire en thallium 208. Il faut garder à l'esprit que la période du thorium 228 est de presque 2 ans et que donc, on ne pourra pas s'affranchir de l'irradiation gamma dans tous les cas. En effet, lors de la fluoration, on sépare le précurseur à vie longue (70 ans) du précurseur à vie plus courte (2 ans), mais comme celle-ci reste relativement longue et que l'on ne peut pas stocker le sel pendant deux ans, il faudra que toute l'unité de retraitement soit blindée.



**Figure 11: Evolution du thallium 208 lors du refroidissement de l'ensemble du sel couverture**



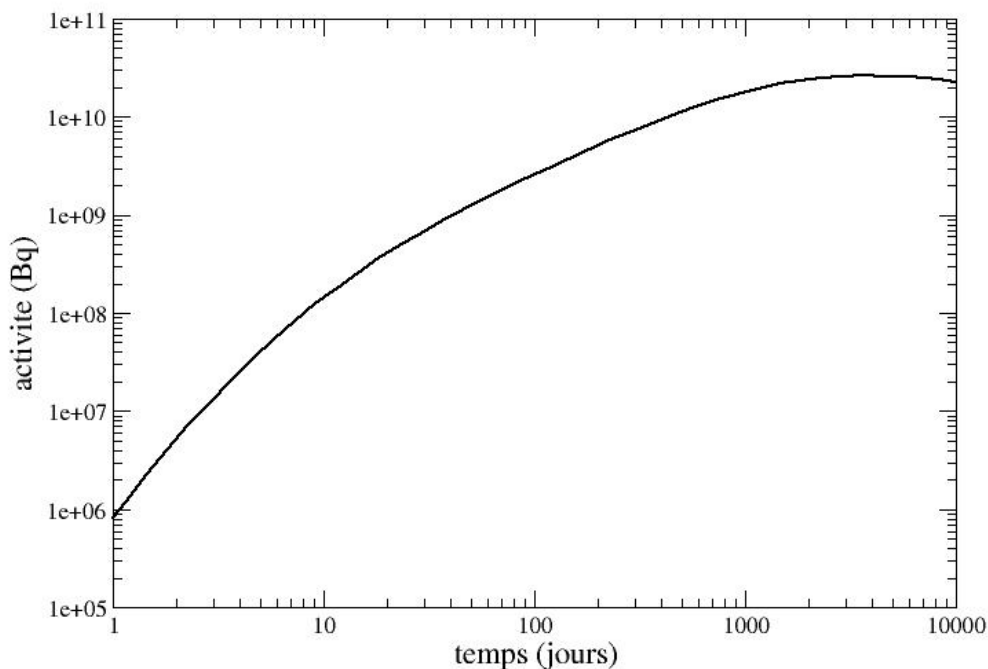
**Figure 12: Evolution de la quantité de thallium 208 dans l'uranium extrait du sel couverture en fonction du temps de refroidissement après extraction**

L'augmentation rapide du nombre d'atome de thallium 208 lors du refroidissement est due à la décroissance du thorium 228 et à la mise à l'équilibre de son fils direct : le radium 224. Ensuite, un équilibre s'installe : l'uranium 232 présent au déchargement commence alors

à décroître et la formation de thallium 208 et sa disparition sont alors en équilibre. Pour éliminer complètement l'activité gamma, puisque la période de l'uranium 232 est de 72 ans, il faudrait laisser refroidir le sel de couverture durant plusieurs centaines d'années. On ne prend évidemment pas en compte cette option, puisque d'un point de vue industriel, on ne peut raisonnablement pas avoir une chaîne de production de combustible qui durerait plus de cent ans !

### ***Remarque sur la prolifération.***

Il faut remarquer que si l'on sépare l'uranium du thorium pour la fabrication de nouveau combustible, comme l'uranium a une période de 72 ans, l'activité gamma après séparation de l'uranium est très faible. L'argument non proliférant du gamma de haute énergie qui suit le combustible semble alors démonté. Cependant, la figure 3.5 représente l'évolution du bismuth 212 normalisé à 1 atome d'uranium 232 à  $t=0s$ . Notons, que dans l'uranium fluoré issu du combustible du T.M.S.R., il y a  $10^{-4}$  atomes d'uranium 232 pour un atome d'uranium 233. Donc, pour un kilo d'uranium extrait à  $t=0s$ , on a  $2,5 \cdot 10^{20}$  atomes d'uranium 232. On voit donc sur la courbe de la figure 13, que au bout de 10 jours environ, on a déjà plus de  $5 \cdot 10^{10}$  atomes de thallium 208 soit environ 5.8 milli-curies. On voit donc, que au bout d'une seule journée, l'activité gamma du thallium 208 est déjà très forte et qu'il est difficile de le manipuler ; dès que l'on considère de grandes quantités d'uranium, l'utilisation d'uranium 233 rend les installations non proliférantes.



**Figure 13: Evolution de l'activité du thallium 208 pour un kilo d'uranium contenant 100 ppm d'uranium 232 à  $t=0s$**

Enfin, notons que tout type de réacteur fonctionnant sur un cycle thorium est confronté à ce type de problème mais les inventaires de déchargement seront très différents suivant le type de réacteur. Il est important de refaire l'évolution du thallium 208 en fonction du temps pour connaître l'intervalle de temps durant lequel il est possible de manipuler le sel de couverture. Les réacteurs à sels fondus ont l'avantage de ne pas nécessiter de transport de

matière active pour le retraitement, donc celui-ci peut être suffisamment rapide pour que l'activité gamma ne pose pas de réel problème. Mais, pour un combustible solide et un parc similaire à celui actuel en France, cela deviendrait beaucoup plus compliqué. En effet, le transport vers une usine de retraitement centralisée (type l'usine de la Hague) risque de demander un blindage spécifique et la logistique commencerait à devenir lourde.

## **4 Premiers résultats de radiotoxicité**

Le T.M.S.R. est un concept de réacteur du futur, et donc, il est difficile d'avoir une analyse critique des résultats produits car il n'est pas possible de faire des comparaisons pertinentes avec les réacteurs actuels. En effet, il faut environ 200 ans pour que la composition du sel T.M.S.R. soit celle de l'équilibre quand on le démarre avec de l'uranium 233 [3] alors que l'on estime qu'une cuve de réacteur du futur ne pourra pas dépasser soixante ans de fonctionnement (il faudra changer le sel combustible de cuve). De plus, pour comparer ces résultats avec ce qui est comparable, il faut garder à l'esprit que les réacteurs à neutrons rapides caloporté au sodium (type European Fast Reactor) fonctionnent avec du combustible solide et que le temps de séjour dans le réacteur est beaucoup plus court. De plus, pour regarder la radiotoxicité à long terme, il faut savoir qu'est ce qui est de la matière valorisable et ce qui ne l'est pas. En effet, par exemple, le plutonium des E.F.R. ne doit pas être considéré comme un déchet et donc il ne faut pas en tenir compte dans l'évaluation de la radiotoxicité. Dans un T.M.S.R., il n'est pas si facile de différencier la matière valorisable des déchets : doit on considérer le plutonium 239 comme un déchet ou comme un combustible ?

Habituellement, on représente les courbes de radiotoxicité en sievert normalisé au nombre de TWh<sub>e</sub> fourni. Dans les différents développements de cette partie, nous regarderons l'évolution de la radiotoxicité des rejets au retraitement (produits de fission et les pertes en actinides), on regardera aussi la part de l'inventaire final lors de l'arrêt du réacteur et l'on essaiera de comparer à un inventaire de réacteur à neutrons rapides : R.N.R-Na.

### ***a. Préliminaire sur le choix du combustible***

L'utilisation du thorium comme noyau fertile n'est pas spécifique aux réacteurs à sels fondus. En effet, beaucoup d'études sont en cours sur l'introduction de thorium dans les réacteurs thermiques d'aujourd'hui [11]. Du fait de la place du thorium dans la charte des isotopes, la production des actinides mineurs à partir de capture neutronique sur le thorium est plus difficile (figure 14).

Comme la radiotoxicité à long terme est largement dominée par les actinides mineurs, on peut penser que les réacteurs au thorium sont moins radiotoxiques. Cependant, on entend couramment que le thorium 232 est quatre fois plus radiotoxique que l'uranium 238. Pour vérifier cette information, on calcule la radiotoxicité d'un noyau d'uranium 238 et celle d'un noyau de thorium 232 que l'on représente dans la figure 15.

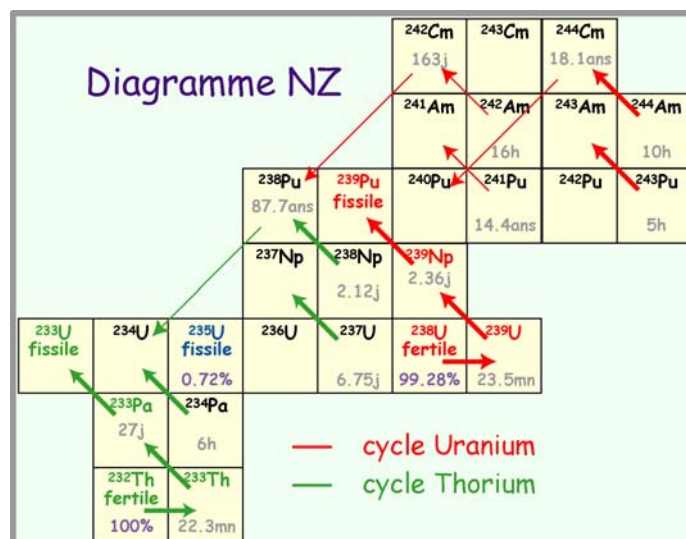


Figure 14: Diagramme N-Z des cycles thorium et uranium

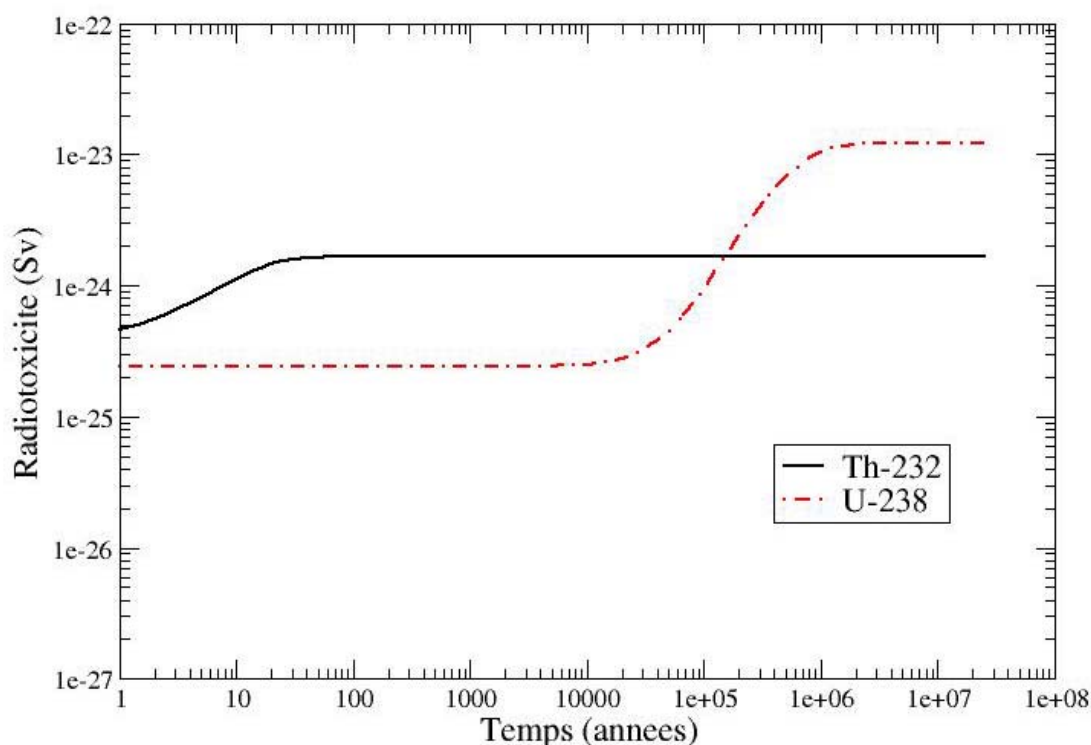


Figure 15: Radiotoxicité à long terme d'un noyau d'uranium 238 et d'un noyau de thorium 232

Les courbes de la figure 15 sont extrêmement riches en résultats bien que très simple. A des temps relativement longs (de 10 ans à 10 000 ans), la radiotoxicité du thorium est plus forte que celle de l'uranium 238 (d'environ un facteur 4). Cependant, à l'équilibre, c'est-à-dire pour des temps beaucoup plus longs, l'uranium est beaucoup plus radiotoxique (environ un facteur 7,5). Le thorium 232 et l'uranium 238 sont en équilibre avec leurs fils puisque leur période de désintégration est beaucoup plus grande que celles de leurs fils. Le thorium décroît sur le radon 228 qui a une demi vie de 5,75 ans ce qui explique que l'équilibre s'installe au bout de dix ans environ. L'uranium 238 lui a comme fils l'uranium 234 qui a un temps de demi-vie beaucoup plus long ( $2,45 \cdot 10^5$  ans). Pour que l'équilibre s'installe, il faut alors

attendre beaucoup plus longtemps. On regroupe dans le tableau 1 les différents facteurs de dose des isotopes qui rentrent en jeu.

**Tableau 1: facteur de dose en Sv/Bq des différents éléments concernés**

Elément	Période	Facteur de dose
U 238	$4,468.10^9$ ans	4,50E-08
Th 234	24,1 jours	3,40E-09
Pa 234	6,7 heures	5,10E-10
U 234	$2,45.10^5$ ans	4,90E-08
Th 230	$7,538.10^4$ ans	2,10E-07
Ra 226	1600 ans	2,80E-07
...		
Th 232	$1,4.10^{10}$ ans	2,30E-07
Ra 228	5,75 ans	6,90E-07
Ac 228	5,15 heures	4,30E-10
Th 228	1,91 ans	7,20E-08
Ra 224	3,66 jours	6,50E-08
...		

Les noyaux qui dominent la radiotoxicité à long terme sont dans le cas du thorium : le thorium 228 et dans le cas de l'uranium : le thorium 230. Rappelons que l'on connaît la radiotoxicité d'un échantillon comme la somme de la radiotoxicité de tous les éléments constituant cet échantillon (équation 1). Dans notre cas, comme on a un équilibre, et que la période des pères est beaucoup plus longue, on a égalité de toutes les activités. L'équation (1) devient donc :

$$R(Sv) = A_0(Bq) \cdot \sum_i F_{di}(Sv / Bq) \quad (10)$$

Dans le cas de l'uranium, la somme des facteurs de dose est plus importante que dans le cas du thorium. Il faut remarquer que, dans le cas du thorium, l'élément responsable de la radiotoxicité est du même numéro atomique que le noyau fertile (Th-228), il sera donc impossible de le séparer chimiquement. Lorsque l'on est à l'équilibre (ce qui est le cas pour notre étude), aucune séparation ou autre traitement ne pourra faire revenir la radiotoxicité au temps  $t=1$ an de la figure 17. Dans le cas de l'uranium, c'est différent : c'est le thorium 230 qui est responsable de la majeure part de la radiotoxicité. On pourra donc séparer le thorium de l'uranium. Si on fait une extraction, on trouvera un équivalent en terme de radiotoxicité qui serait le double du plateau initial du fait de la présence de  $^{234}\text{U}$ . Et dans le cas des réacteurs à neutrons rapides, on travaille sur de l'uranium appauvri, et donc on se retrouve principalement avec de l'uranium 238 donc a un équivalent des faibles temps de la figure 17.

En conclusion, on peut dire que l'uranium à l'équilibre avec ses fils est plus radiotoxique que le thorium. C'est le cas quand il faudra faire une extraction minière du combustible. Cependant, après séparation chimique, la radiotoxicité de l'uranium chute d'un facteur environ 3,5 et lorsque l'on manipule du combustible appauvri, l'uranium est beaucoup moins radiotoxique. Le choix n'est donc pas évident et à différentes étapes, la radiotoxicité est plus ou moins forte dans l'un ou l'autre choix de cycle.

## ***b. Remarque sur les produits de fission***

Comme la période de désintégration des actinides est le plus souvent longue, la radiotoxicité à long terme est dominée par celle des actinides. En revanche, les produits de



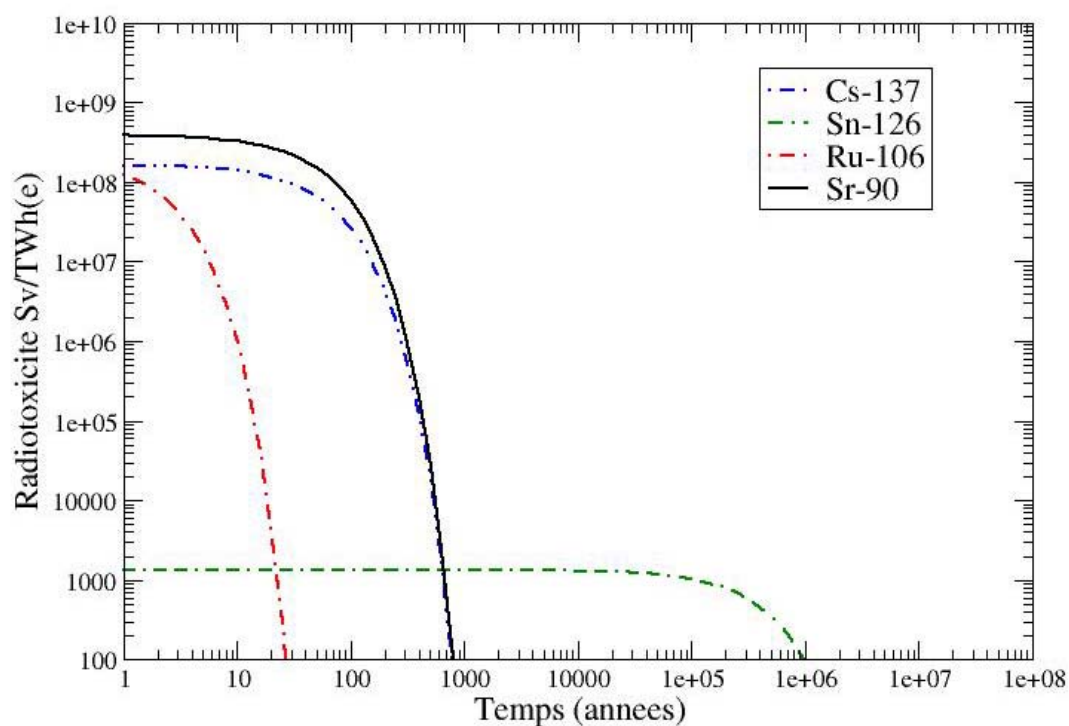
fission ont une radiotoxicité beaucoup plus forte à court terme. En effet, comme leur période est plus courte, l'activité des produits de fission est beaucoup plus forte que celle des actinides dans les premières années. A plus long terme, et jouant un rôle dans la radiotoxicité, on notera l'iode 129 ( $1,57 \cdot 10^7$  ans de durée de vie), le technétium 99 ( $2,11 \cdot 10^5$  ans de durée de vie) et l'étain 126 ( $10^5$  ans de durée de vie). A court terme et comme élément très radiotoxique, on retrouve le césium 137 (30 ans de durée de vie) et le strontium 90 (29 ans de durée de vie). Pour les produits de fission qui ont une durée de vie longue, la définition de la radiotoxicité ne pose pas de problème, mais pour ceux qui ont une durée de vie plus courte, c'est beaucoup plus problématique. En effet, si la période est très grande devant la vie du sel combustible, on peut alors regarder la radiotoxicité des produits de fission à long terme au même titre que celle des actinides. Mais, si la période est courte ou du même ordre de grandeur que la durée de vie du sel, doit-on regarder la radiotoxicité des produits de fission en fin de vie du réacteur (Celle-ci sera donc sous estimée) ? Ou alors doit-on considérer le problème en début de vie ? On a regardé la radiotoxicité des produits de fission au bout d'un an, en supposant le retraitement très efficace (retraitement total du cœur en 8 jours). La radiotoxicité est alors largement surestimée puisque l'on ne permet pas la transmutation dans le cœur de certains produits de fission. On représente cette radiotoxicité dans la figure 16. A titre de comparaison, on a aussi mis la courbe de radiotoxicité des produits de fission accumulés dans le stockage pendant les 200 ans de fonctionnement dans la figure 19. On remarque plusieurs différences :

- ✓ La radiotoxicité par térawatt-heure (TWh) du strontium 90 et du césium 137 a globalement chuté d'un facteur 10. La période de ces deux éléments qui est à peu près la même ( $\sim 30$  ans), est relativement faible devant la vie du sel. Ces deux produits de fission ne s'accumulent donc pas dans le stockage durant les 200 ans de fonctionnement. Comme la quantité ne change pas sensiblement, mais que le réacteur a produit beaucoup plus d'énergie, la radiotoxicité normalisée au TWh<sub>e</sub> est donc beaucoup plus faible.
- ✓ La radiotoxicité de l'étain 126 n'a pas changé : L'étain s'accumule dans le stockage puisqu'il a une durée de vie très longue. La quantité qu'on retrouve au stockage est donc directement proportionnelle à l'énergie produite. Logiquement la radiotoxicité normalisée ne change donc pas.
- ✓ On ne voit plus la courbe du Ru-106 après 200 ans. En effet, il a une durée de vie très courte : 373 jours et donc ne s'accumule pas du tout dans le stockage. Sa radiotoxicité normalisée à un TWh<sub>e</sub> au bout de 200 ans est donc très faible.

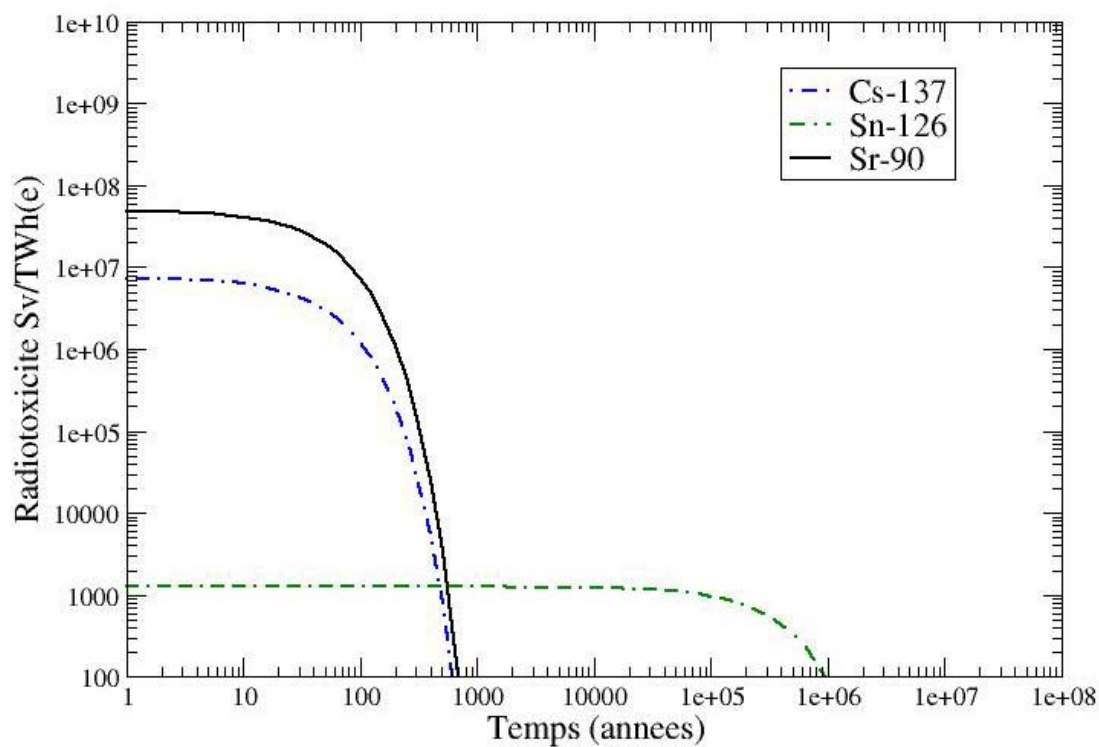
Pour un réacteur à combustible solide, la définition est beaucoup plus facile : on peut regarder l'inventaire des P.F. lors de la décharge du réacteur et donc sa radiotoxicité, mais pour un réacteur régénérateur à l'équilibre, le calcul est beaucoup plus ambiguë.

Il faut ajouter que les produits de fission sont directement issus des fissions. Par conséquent, l'inventaire des produits de fission et donc leur radiotoxicité ne dépend que du combustible. Pour comparer convenablement les différentes filières, il faudrait regarder le spectre de fission d'un atome d'uranium 235, d'un atome de plutonium 239 et d'un atome d'uranium 233. Avec ces inventaires, on pourrait regarder de manière objective la radiotoxicité des produits de fission.

Notons enfin que le spectre de produits de fission ne change réellement pas d'un fissile à un autre. Ce qui fait la particularité de tel ou tel réacteur vis-à-vis de la radiotoxicité des produits de fission est sa capacité à les transmuter. Cette capacité est directement reliée au flux neutronique et au temps de séjour dans le cœur. Une analyse approfondie de la radiotoxicité des produits de fission en fonction de l'efficacité de retraitement serait très intéressante.



**Figure 16: radiotoxicité des P.F. extraits pendant un an avec un retraitement très efficace  
(le cœur est retraité en totalité en 8 jours)**

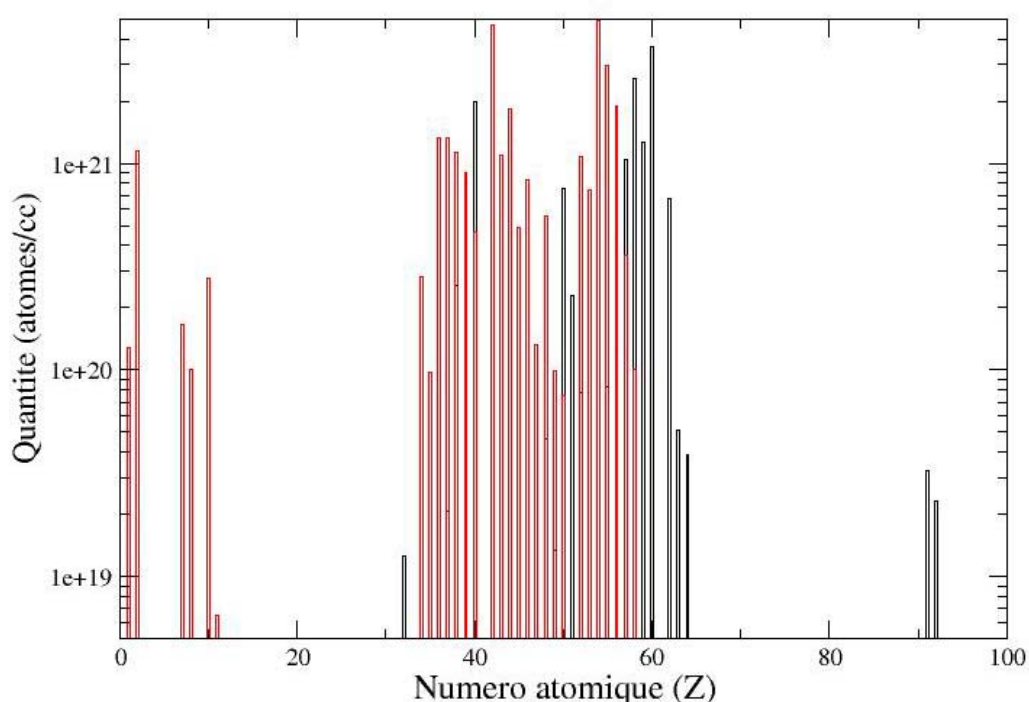


**Figure 17: radiotoxicité des P.F. extraits pendant 200 ans  
(le cœur est retraité en totalité en 2,3 ans)**

En conclusion sur cette partie, on peut dire que la radiotoxicité des produits de fission est trop difficile à évaluer de manière complètement objective, car trop dépendante des conditions de fonctionnement. Dans la suite, on se focalisera sur la radiotoxicité à long terme et donc sur les actinides.

### **c. Le sel à l'équilibre (au bout de 200 ans)**

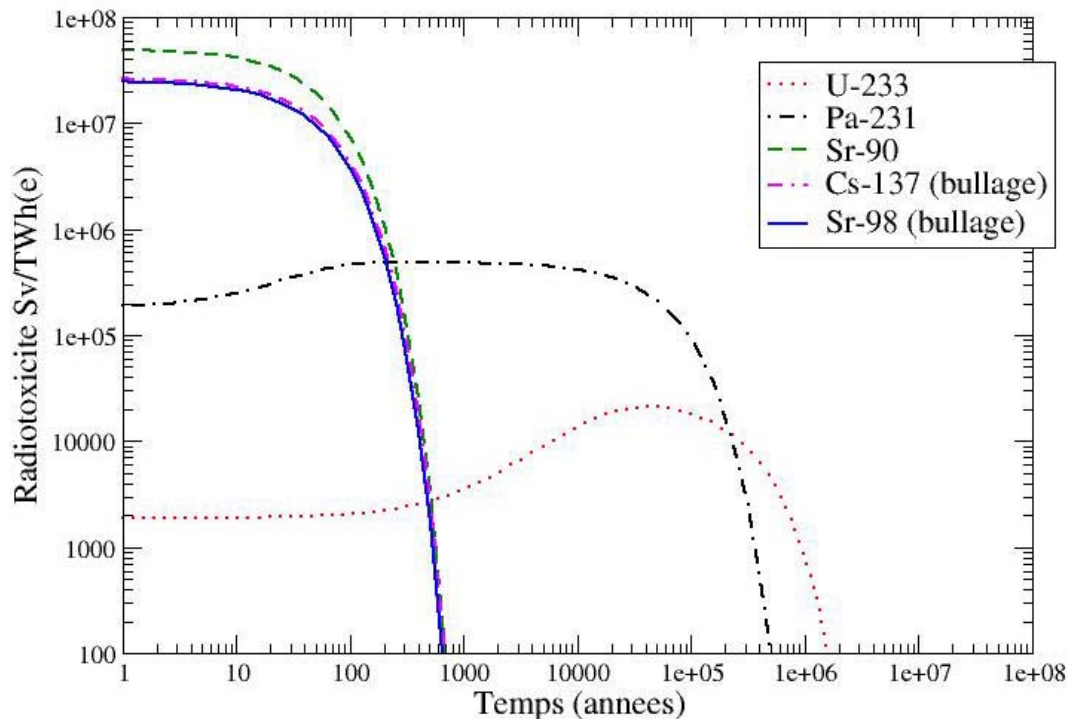
On a vu que le sel T.M.S.R. a été conçu pour durer. Il suffira de transférer le sel d'une cuve à une autre et les pertes seront alors très faibles. Le stockage final se réduira aux produits de fission et à quelques traces d'actinides (issues du rejet lors du retraitement) qui s'accumuleront au fil des ans. La composition du stockage des produits de fission est représentée sur la figure 18 (les quantités sont données en atomes par cm<sup>3</sup>).



**Figure 18: composition du stockage final (en noir, les quantités extraites par le retraitement pyrochimique et en rouge les quantités extraites par le bullage)**

On remarque d'abord que les produits de fission sont beaucoup plus nombreux que tous les actinides mais que ceux-ci sont en quantités non négligeables. On représente en rouge les produits de fission issus du bullage et en noir les produits de fission qui sont extraits du sel grâce au retraitement pyrochimique. Il est important de noter que le bullage possède une efficacité comparable au bullage du M.S.R.E. (période caractéristique : 30s) et l'on note bien l'importance de ce bullage (on retire une grande quantité de produits de fission surtout pour des numéros atomique intermédiaire).

La radiotoxicité définie dans le paragraphe 2 d'une telle composition est calculée et représentée sur la courbe de la figure 19.

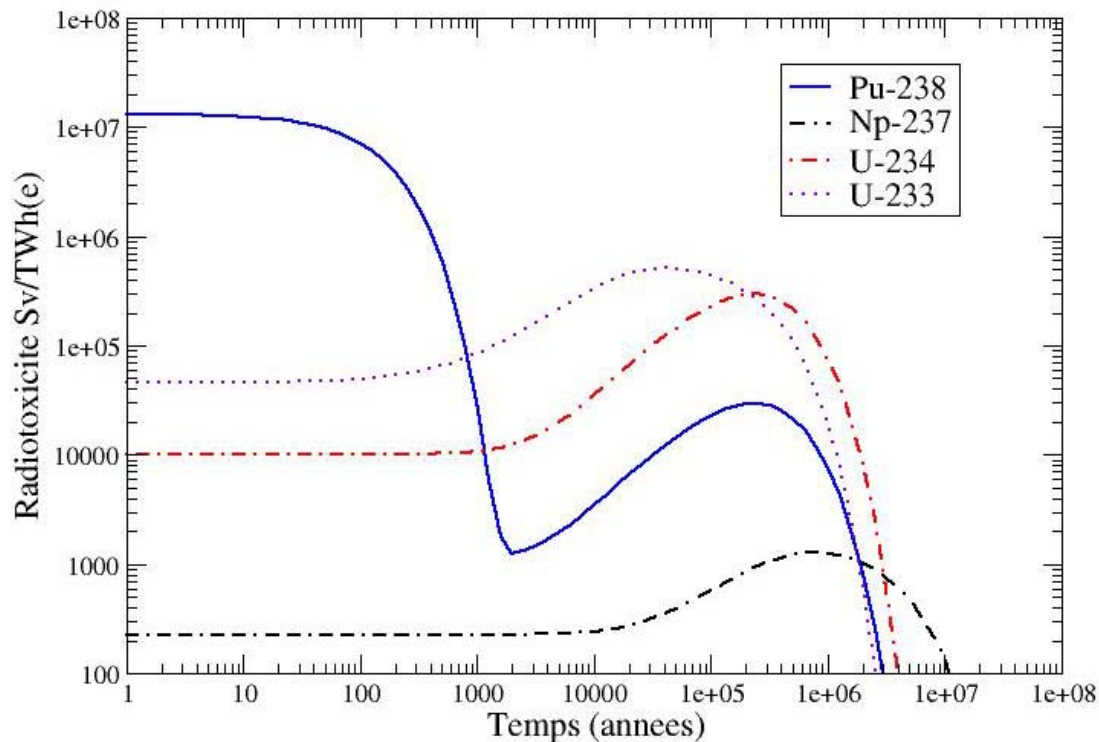


**Figure 19: radiotoxicité du stockage**

Le code d'évolution donne des compositions en atomes par  $\text{cm}^3$ . Comme on représente généralement la radiotoxicité en sievert par TWh<sub>e</sub>, il est nécessaire de faire une conversion. Le T.M.S.R. produit 8.76TWh(e) par an de fonctionnement à pleine charge. Comme on suppose qu'il va fonctionner pendant 200 ans, on considère qu'un sel de T.M.S.R. produit 1750TWh(e). Le volume du sel est de  $20\text{m}^3$  soit  $2.10^7\text{cm}^3$ . Le facteur correctif entre les quantités données par le code d'évolution et la radiotoxicité en Sv/TWh(e) est donc de 11628.

Les composés rejetés qui imposent la radiotoxicité totale à long terme sont sans aucun doute le protactinium 231 et l'uranium 233. La durée de vie du  $^{231}\text{Pa}$  est de  $3,276.10^4$  ans. Les pertes sont essentiellement dues au passage dans l'échangeur contre-courant. En effet, le protactinium est à peu près aussi stable dans la phase sel que dans la phase métallique de l'échangeur contre-courant. Il n'y a donc pas de réelle extraction. On peut même dire que dans notre simulation, on réinjecte autant de protactinium en cœur que l'on en jette au stockage, ce qui n'est pas du tout satisfaisant. En changeant un peu les configurations, on pourrait améliorer grandement l'extraction du protactinium, et la radiotoxicité du stockage diminuerait grandement (jusqu'au niveau de l'uranium 233).

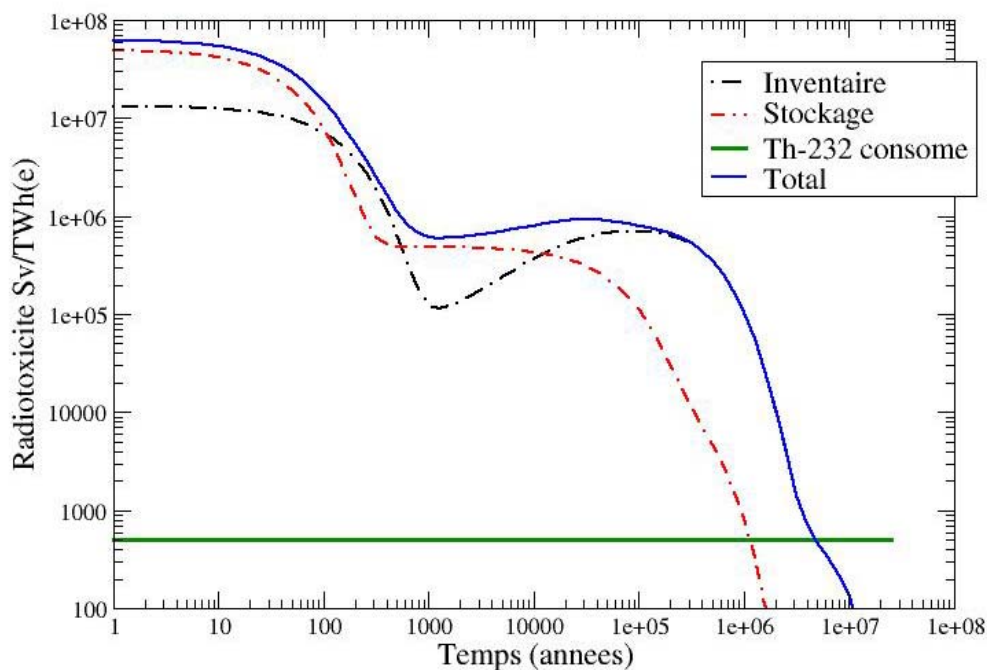
Cette courbe de radiotoxicité ne montre que les éléments qui sont partis au stockage, et il reste tout l'inventaire du cœur. On peut toujours recycler ce sel dans une autre cuve, mais lorsque l'on arrêtera un jour définitivement ces réacteurs, la radiotoxicité de l'inventaire à l'équilibre sera beaucoup plus forte que la radiotoxicité du stockage final. On représente sur la figure 20 cette radiotoxicité et l'on voit (si l'on considère que le réacteur à fonctionné 200 ans) que la radiotoxicité due aux actinides est deux ordres de grandeurs supérieure (du moins au début du stockage).



**Figure 20: radiotoxicité de l'inventaire à l'équilibre**

Le recyclage des actinides fait donc que la radiotoxicité à long terme est dominée par l'inventaire nécessaire au fonctionnement et pas au rejet. Le rôle principal de l'unité de retraitement reste donc la séparation des actinides pour les réinjecter en cœur.

Pour conclure sur ce paragraphe, regardons la radiotoxicité dans sa globalité. Les courbes sont présentées dans la figure 21 :



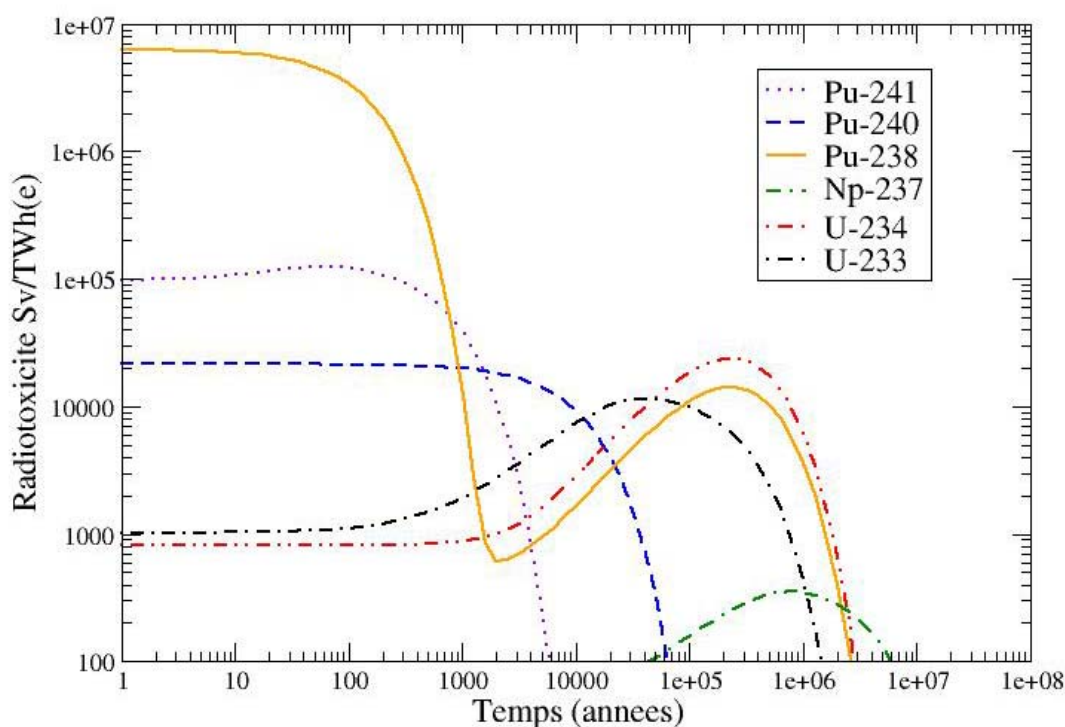
**Figure 21: totaux des radiotoxicité et comparaison avec le thorium consommé**

On voit sur cette figure que l'on ne redescendra pas au dessous de la radiotoxicité naturelle essentiellement à cause de l'uranium 235 (fils du plutonium 239 et produit par captures successives sur l' $^{233}\text{U}$ ) qui a une durée de vie trop longue.

#### **d. L'incinération**

On vient de voir que la toxicité de l'inventaire était prépondérante à long terme, et lors de l'arrêt définitif du réacteur, on se retrouvera avec 20 m<sup>3</sup> de sel très radiotoxique. Cependant, certaines solutions ont été envisagées et la meilleure semble être l'incinération définitive de tous les actinides. L'idée est de prendre un sel T.M.S.R., d'enlever le thorium et de le remplacer par les actinides d'autres T.M.S.R. pour arriver à une criticité. Une évolution a été faite sur ce principe. En fin de vie des réacteurs, on arrive à brûler pendant 60 ans les actinides produits dans l'équivalent de 7,6 T.M.S.R. produisant ainsi 13300 TWh(e) (ce qui représente quand même 62 tonnes d'actinides). A partir de cette évolution, on peut alors calculer la radiotoxicité de l'inventaire au bout de soixante ans de fonctionnement. On représente cette courbe dans la figure 22. La première conclusion est que l'on n'a pas réduit énormément la radiotoxicité à court terme : en effet, l'ordre de grandeur après un petit temps de refroidissement reste le même. Cependant, la radiotoxicité est à présent dominée par le plutonium 238 qui a 87 ans de période et qui décroît sur l'uranium 236 très peu radiotoxique. Comme on a brûlé tout l'uranium 233 restant, celui-ci ne joue plus un rôle important dans la radiotoxicité à long terme. En effet, on ne voit presque plus la remontée à 10 000 ans, et après 1000 ans de refroidissement, on a diminué de plus d'un facteur 100 ce qui est très satisfaisant.

En conclusion, on peut dire que l'on a une radiotoxicité dominée par l'inventaire en cœur, mais qu'en fin de vie du réacteur, il est possible de réduire la période de refroidissement à 1000 ans assez facilement en incinérant les actinides produits.



**Figure 22: radiotoxicité de l'inventaire après incinération**

### e. Comparaison avec un réacteur à neutrons rapides caloporté au sodium

Pour avoir une analyse un peu plus critique de ces résultats, nous allons les comparer dans cette partie à ceux d'un réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium qui est le réacteur de quatrième génération de référence. Les inventaires qui ont servi à faire ces calculs sont tous issus de la même référence qui est une note technique du C.E.A. sur les scénarios [12].

Les réacteurs à neutrons rapides classiques (type E.F.R.) fonctionnent sur le cycle U/Pu. On voit donc grossièrement qu'il faudra moins de captures successives sur le combustible pour produire des actinides mineurs et on peut penser que la radiotoxicité sera plus grande.

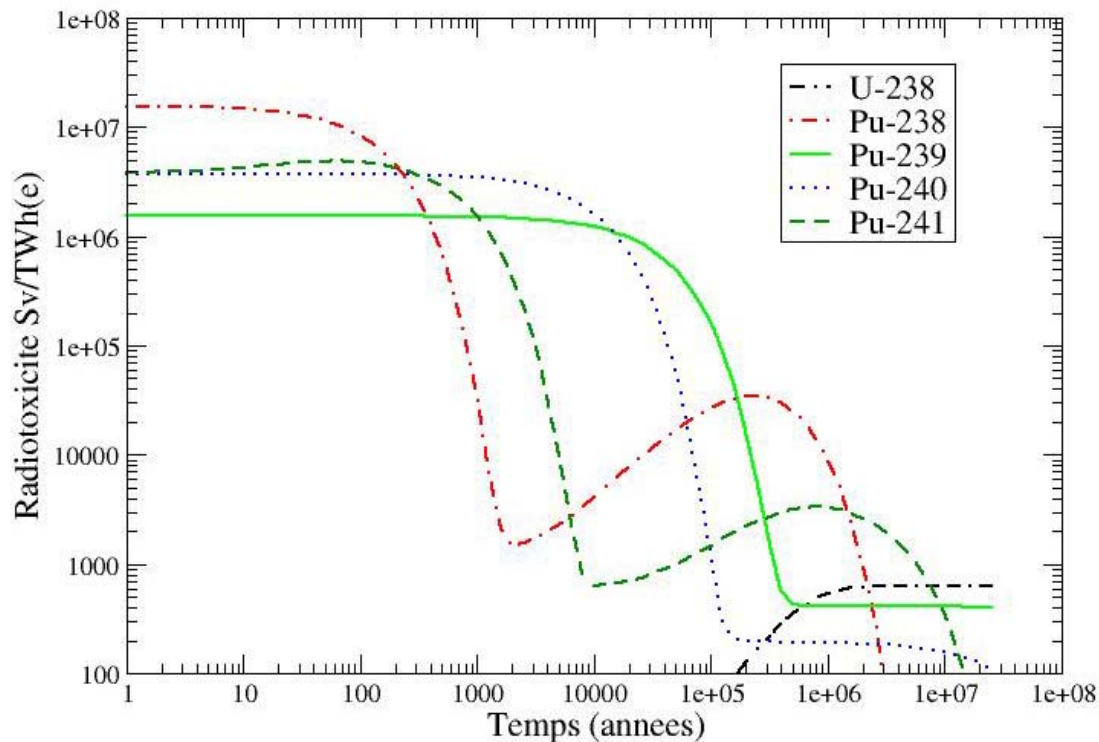
Le mode de recyclage du combustible dans ce type de réacteur est très différent : en effet, comme le combustible est solide, on ne peut pas retraiter une partie du cœur chaque jour mais retraiter entièrement le cœur à chaque cycle. En réalité, c'est encore plus complexe que cela, puisque le renouvellement est assuré par tiers et donc, à chaque cycle, on extrait un tiers du cœur. L'inventaire de sortie d'un tel réacteur, et après 5 ans de refroidissement est donné dans le tableau 2. Pour comparer les inventaires de manière correcte, on regardera les inventaires à l'équilibre par TWh produit. Cependant les quantités sont par cycle, on regardera donc un fonctionnement sur 200 ans en multirecyclage. Un cycle d'un réacteur à neutrons rapides dure 5 ans, et il y a un retraitement de 2 ans après 5 ans de refroidissement. Les quantités données dans le tableau ci-dessous doivent donc être modifiées pour comparer avec le T.M.S.R. On considérera que les quantités doivent être multipliées par 12/5 pour un réacteur : un inventaire en cœur, un inventaire en refroidissement et 2/5 d'inventaire au recyclage. Comme on a les quantités en kilogrammes par TWh dans le tableau 2, il faut en fait, pour faire une comparaison correcte avec le T.M.S.R., multiplier ces quantités par un facteur 12/5. Mais, pour comparer les durées de fonctionnement, il faut garder à l'esprit que cet inventaire durera 200 ans, soit 40 cycles. Chaque quantité du tableau doit donc être multipliée par 0,48 ( $=12/5 * 40/200$ ).

**Tableau 2: inventaire de décharge d'un R.N.R.-Na**

quantité en kg/TWh(e) dans un cycle							
cœur en fin de vie + 5 ans							
U	469,87	Pu	131,68	Am	6,2	Cm	1,62
U238	469,87	Pu238	3,07	Am241	4,42	Cm243	0,04
		Pu239	67,63	Am242	0,25	Cm244	1,15
		Pu240	49,24	Am243	1,53	Cm245	0,25
		Pu241	5,79			Cm246	0,16
		Pu242	5,94			Cm247	0,02
						Cm248	0,01
Couverture axiale fin de vie + 5 ans							
U	68,17	Pu	5,46	Am	0,02		
U238	68,17	Pu238	0	Am241	0,02		
		Pu239	4,62	Am243	0		
		Pu240	0,77				
		Pu241	0,06				
		Pu242	0				
Couverture radiale fin de vie + 5 ans							
U	50,18	Pu	6,04	Am	0,04		
U238	50,18	Pu239	4,82	Am241	0,04		
		Pu240	1,1	Am242	0		

La radiotoxicité d'une telle composition est tracée dans la figure 23.

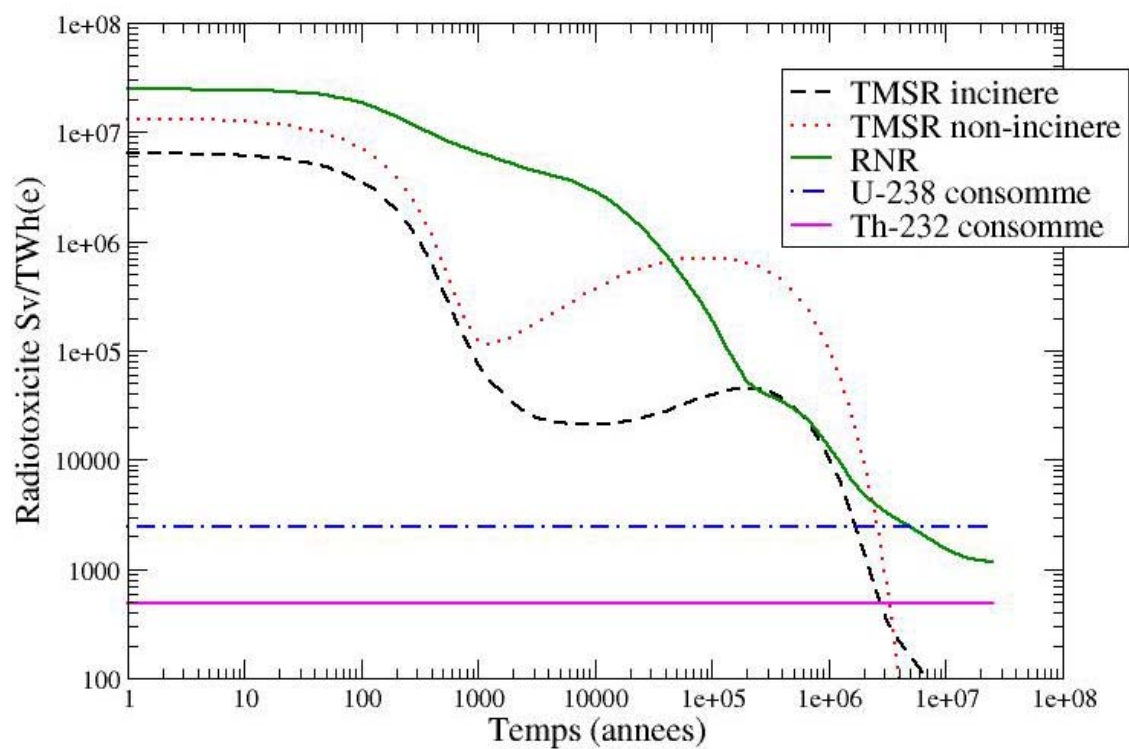




**Figure 23: radiotoxicité de la composition du tableau 2**

On voit qu'à long terme, c'est le plutonium 238 qui domine à cause de la remontée due à l'uranium 234, mais notons aussi l'importance du plutonium 241. A court terme, on retrouve les contributions des isotopes 238 et 240 du plutonium qui dominent largement la radiotoxicité de l'inventaire total. Tout au long du refroidissement, ce sont les isotopes du plutonium qui prédominent. On remarque que la radiotoxicité totale est plus d'un ordre de grandeur plus grande dans le cas du réacteur à neutrons rapides que dans le cas du T.M.S.R. Pour plus de clarté, on représente sur une même courbe (figure 24) les radiotoxicités à l'équilibre de chacun des types de réacteur, ainsi que la radiotoxicité de l'uranium 238 nécessaire équivalent pour cette production d'énergie. Le constat est plutôt en faveur du T.M.S.R. En effet, dans le cas non-incinéré, la radiotoxicité est plus faible à des temps de refroidissement faible. La remontée de radiotoxicité de cas peut sembler défavorable à long terme, mais il faut remarquer que le temps de remise à un niveau naturel est plus court dans le cas du T.M.S.R. En effet, il faut moins de temps pour que la radiotoxicité de l'inventaire T.M.S.R. passe sous la radiotoxicité du thorium 232 équivalent que dans le cas d'un R.N.R. où l'on comparerait la radiotoxicité de l'inventaire avec celle de l'uranium 238 équivalent. Dans le cas du T.M.S.R. dont on aurait incinéré le combustible, la démonstration est évidente, on se retrouve toujours sous le niveau d'un réacteur à neutrons rapides.





**Figure 24: radiotoxicités totales des inventaires à l'équilibre d'un R.N.R.-Na et d'un T.M.S.R. comparées à celle de l'U-238 consommé.**

## **Conclusion**

Le T.M.S.R. (Thorium Molten Salt Reactor), véritable réacteur de quatrième génération est très intéressant en de nombreux point. Premièrement, il a un coefficient de contre-réaction négatif ce qui lui assure une sûreté intrinsèque que les autres réacteurs de génération quatre n'ont pas. Ensuite, il peut être utilisé conjointement pour incinérer les actinides ce qui permet donc de brûler les combustibles usés issus des réacteurs actuels, et de ne pas accumuler d'actinides mineurs, puisque tous ceux produits restent en cœur et ne s'accumulent donc pas. On a vu dans la dernière partie de ce rapport que la radiotoxicité à long terme de ce réacteur semble très intéressante. En effet, on garde au bout de 200 ans une radiotoxicité importante mais, on remarque qu'elle est très en deçà de la radiotoxicité d'un réacteur type E.F.R. (European Fast Reactor) fonctionnant sur un cycle U/Pu.

Il faut noter que, concernant les produits de fission, la radiotoxicité est très difficile à définir. On retiendra que ce qui diffère d'un réacteur à l'autre est la capacité du réacteur à transmuter ces produits de fission. Le T.M.S.R. semble offrir énormément de possibilité de ce point de vue. En effet, grâce au système de retraitement en ligne du combustible, il est envisageable de trier les déchets produits en fonction de leur période. Certains produits de fission à vie longue pourront être alors réinjectés en cœur comme les actinides pour être transmutés.

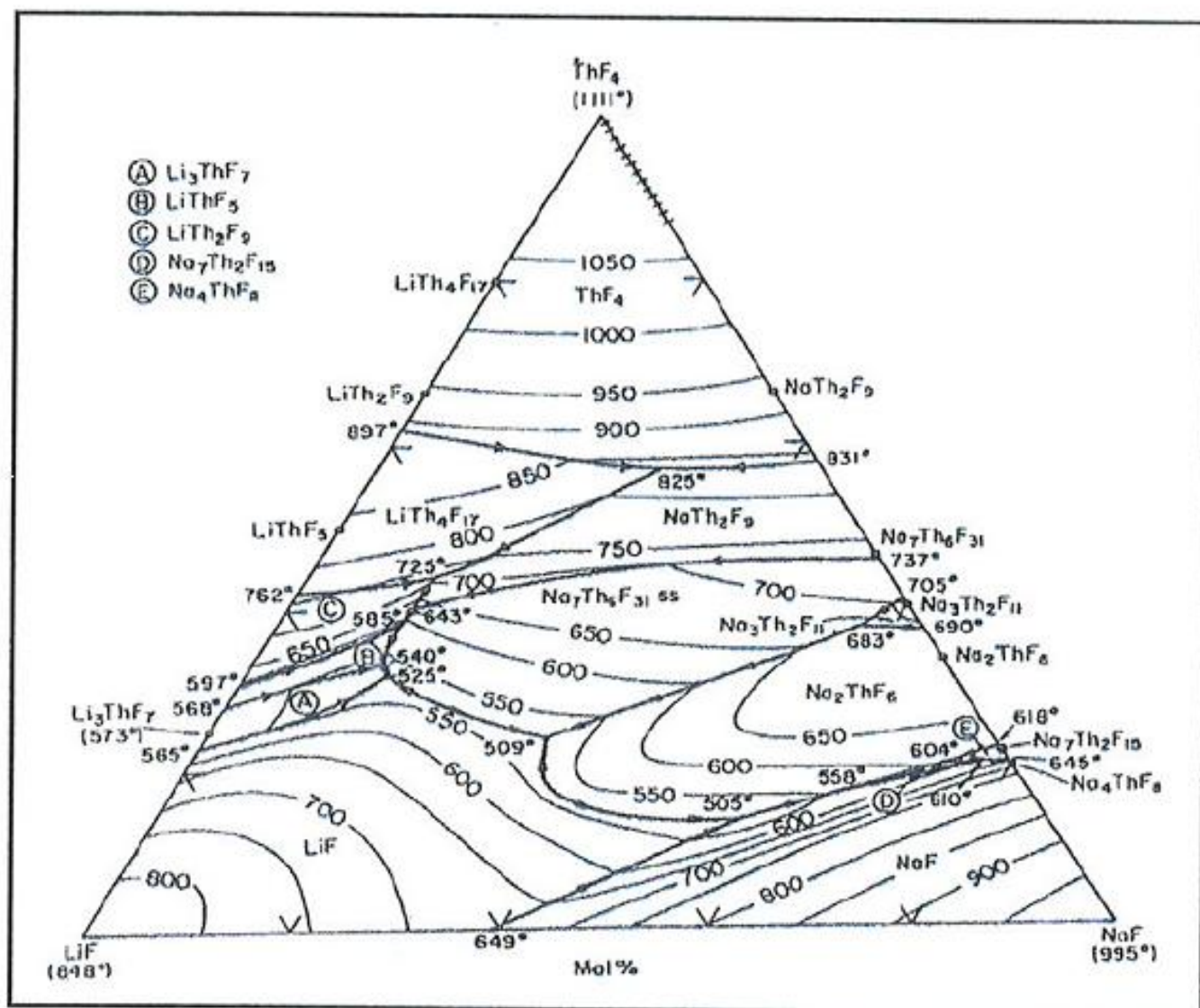
De nombreuses études devront encore être faites pour consolider ces premiers résultats. Rappelons que les courbes présentées ici ne sont issues que d'une seule modélisation. On pourra améliorer la compréhension et donc la modélisation pour avoir des résultats encore plus satisfaisants. Il faut aussi regarder le problème de la chaleur dégagée qui semble être le problème le plus important aujourd'hui dans l'enfouissement. Cette étude devrait être faite assez rapidement puisque le code développé pendant ce stage permet aussi de trouver la chaleur dégagée en fonction d'un inventaire donné. De cette chaleur dégagée, découlera le dimensionnement du stockage.

L'objectif de ce stage était de prendre en main les différents outils de simulation et apercevoir les possibilités de l'unité de retraitement en terme de radiotoxicité. Il m'a fallu apprendre ce qu'est la radiotoxicité et comment on la calcule. Le développement du code de calcul de radiotoxicité m'a pris une bonne partie de mon stage. Cependant, les résultats fournis durant la deuxième partie du stage sont cohérents et valident ainsi donc l'outil. La prise en main du code d'évolution n'a pas été très facile, et j'ai dû effectuer quelques simulations avant de comprendre réellement le principe. Les résultats fournis sont intéressants et montrent qu'une optimisation doit être possible. J'espère que trois ans suffiront pour étudier le retraitement de ce réacteur.

## **Bibliographie :**

- 1 : E. MERLE-LUCOTTE, « Futur du nucléaire-Nucléaire », Actes de la conférence 'Rencontres Jeunes Chercheurs 2006' de la société Française division Physique Nucléaire, Les Houches, France (2007)
- 2 : L. MATHIEU, « Cycle Thorium et Réacteur à Sel Fondu : Exploration du champ des Paramètre et des Contraintes définissant le Thorium Molten Salt Reactor », thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, France (2005)
- 3 : E. MERLE-LUCOTTE, D. HEUER, C. LE BRUN, M. ALLIBERT, V. GHETTA, L. MATHIEU, R. BRISSOT, E. LIATARD, « The Non-Moderated TMSR, an Efficient Actinide Burner and a Very Promising Thorium Breeder », Actes de la conférence Global2007, La Boise, USA (2007)
- 4 : E. MERLE-LUCOTTE, D. HEUER, M. ALLIBERT, V. GHETTA, C. LE BRUN, L. MATHIEU, R. BRISSOT, E. LIATARD, « Optimized Transition from the Reactors of Second and Third Generations to the Thorium Molten Salt Reactor », Contribution 7186, Actes de la conférence ICAPP (International Congress on Advances in Nuclear Power Plants), Nice, France (2007)
- 5 : M.JACQUIN, « Critère de choix du sel MSBR », Electricité de France, Direction des Etudes et Recherches, EDF/DER/RNE/phR HF/13/19/75 (1963)
- 6 : Journal officiel de la république française : Ministère de la santé, de la famille et des personnes handicapées, « Arrêté du premier septembre 2003 définissant les modalités de calcul des doses efficaces et des doses équivalentes résultant de l'exposition de personnes aux rayonnements ionisants. », *SANCO232527A*, p.58003 à p.58054 (2003)
- 7 : [www.netlib.org/LAPACK](http://www.netlib.org/LAPACK)
- 8 : A.NUTTIN, D.HEUER, A.BILLEBAUD, R.BRISSOT, C.LEBRUN, E.LIATARD, J-M.LOISEAUX, L.MATHIEU, O.MEPLAN, E.MERLE-LUCOTTE, H.NIEFFNECKER, F.PERDU, S.DAVID, « Potential of thorium molten salt reactor : Detailed calculation and concept Evolution with a view to large scale energy production », *Progress in Nuclear Energy*, volume 46 Issue 1 (2005)
- 9 : L.MATHIEU, « Simulation du retraitement d'un réacteur à sels fondus », Rapport de D.E.A. Energétique physique à l'I.N.P.G. (2002)
- 10 : R.B.FIRESTONE, V.S.SHIRLEY, *Table of isotopes*, Eighth Edition, Volum 2, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California (1996)
- 11 : R.CHAMBON, P.GUILLEMIN, A.NUTTIN, A.BIDAUD, N.CAPELLAN, S.DAVID, O.MEPLAN, J.WILSON, « Neutronic study of slightly modified water reactors and application to transition scenarios », Actes de la conférence Global2007, La Boise, USA (2007)
- 12 : C. DE SAINT JEAN, M. DELPECH, J. TOMMASI, G. YOUINOU, P.GOURDOT, « Scenario CNE : Réacteurs classiques, caractérisation à l'équilibre. » CEA report DER/SPRC/LEDC/99-448 (2000)

Annexe 1 : Diagramme ternaire LiF-NaF-ThF<sub>4</sub>



## **Annexe 2 : Schéma de référence de l'unité de retraitement pyrochimique.**

